

**Die Ladungsverteilung in der Kette—132 bei verschiedenen
Spaltungsreaktionen und verschiedenen Anregungsenergien
der Fragmente**

Gottfried Paffrath

1996



Dekan

Prof. Dr. G. Zachmann

1. Berichterstatter: Prof. Dr. H.-O. Denschlag

2. Berichterstatter: Prof. Dr. G. Herrmann

Tag der mündlichen Prüfung: 23. Juli 1976

Die Ladungsverteilung in der Kette-132 bei verschiedenen
Spaltungsreaktionen und verschiedenen Anregungsenergien
der Fragmente

Dissertation
zur Erlangung des Grades
'Doktor der Naturwissenschaft'

am Fachbereich Chemie
der Johannes Gutenberg Universität Mainz

Gottfried P a f f r a t h
geb. in Worms

Mainz, Juni 1976

Zusammenfassung

Die Ausbeuten der Nuklide ^{132}Sn , ^{132}Sb und ^{132}Te wurden bei der Spaltung von Pu-239 und Cf-249 mit thermischen Neutronen nach Abtrennung der Nuklide als Hydride aus dem Gemisch der Spaltprodukte untersucht. Außerdem wurde in diesen beiden Fällen, sowie bei der Spaltung von U-235 mit thermischen Neutronen das Verhältnis der beiden isomeren Zustände bei Antimon-132 (8^- und 4^+) gemessen.

Folgende Ergebnisse wurden erhalten:

Pu-239: ^{132}Sn ($9.0 \pm 1.7\%$) (fc); ^{132}Sb ($50.4 \pm 2.5\%$) (f1); ^{132}Te ($39.6 \pm 1.2\%$) (f1); $\text{Sb}^{8^-}/\text{Sb}^{4^+} = 0.33 \pm 0.0$

Cf-249: ^{132}Sn (0.14 ± 0.06) (cu); ^{132}Sb (1.62 ± 0.29) (cu); $\text{Sb}^{8^-}/\text{Sb}^{4^+} = 0.47 \pm 0.05$

U-235: $\text{Sb}^{8^-}/\text{Sb}^{4^+} = 0.44 \pm 0.05$

Weiterhin wurden bei der Spaltung von Cf-249 und Pu-239 mit thermischen Neutronen die kumulierten Ausbeuten der Nuklide ^{131}Sn , ^{133}Sb und ^{134}Sb erhalten:

Pu-239: ^{131}Sn (0.45 ± 0.07); ^{133}Sb (1.06 ± 0.39); ^{134}Sb (0.28 ± 0.10)

Cf-249: ^{133}Sb (1.79 ± 0.41); ^{134}Sb (0.31 ± 0.18).

Eine Gaußsche Normalverteilung mit $\sigma=0.56$ wurde an die Meßwerte angepaßt und die wahrscheinlichste Kernladung Z_p und die Abweichung dieses Wertes vom berechneten Z_{UCD} -Wert ΔZ bestimmt. Für die Kette-132 wurden folgende Ladungsverschiebungen ΔZ ermittelt:

Pu-239: $Z_p^{132} = 51.3 \pm 0.05$ $\Delta Z = -0.59 \pm 0.05$

Cf-249: $Z_p^{132} = 51.7 \pm 0.1$ $\Delta Z = -0.41 \pm 0.1$

Bei den radiochemischen Werten der Ladungsverteilung in der Kette-132 zeigt sich, wie es ähnlich schon bei U-235(n_{th},f) gezeigt wurde, eine Diskrepanz zu Ausbeuten

Untersuchungen mit Uran-235 als Spaltmaterial konnten den Unterschied der Meßergebnisse nicht auf die unterschiedlichen Versuchsbedingungen zurückführen.

Diese Messungen, die am Massenseparator Lohengrin in Grenoble durchgeführt wurden und als Funktion der Ionenladung und der Rückstoßenergie der Fragmente die Ladungsverteilung in der Kette-132 untersuchten, zeigten 3 verschiedene Effekte:

1. prompte Neutronenemission: Die Abdampfung der prompten Neutronen ist im Energiebereich von 70 MeV bis 81.5 MeV zu erkennen, bei höheren Rückstoßenergien der Fragmente ist sie unterdrückt. Dies ist an einer systematischen Verschiebung des Z_p -Wertes in diesem Bereich von 51.58 bei 70 MeV bis zu 51.09 bei 81.5 MeV zu erkennen. Ab 81.5 MeV tritt keine merkliche Änderung des Z_p -Wertes mehr ein.
2. gerade-ungerade-Effekt: Über den gesamten gemessenen Energiebereich von 70 bis 85 MeV läßt sich das Auftreten eines gerade-ungerade-Effektes erkennen. Für die gemessenen Energien bis 81.5 MeV läßt sich ein Effekt, wie von Amiel und Feldstein angegeben von $\pm 25\%$ nachweisen. Bei höheren Energien tritt die Nukleonpaarung noch stärker in den Vordergrund. Der Effekt, der von der Nukleonpaarung stammt beträgt bei ungeradem Z -64% und bei geradem Z +66%.
3. Schaleneffekt: Ein Einfluß der abgeschlossenen Nukleonschalen $Z=50$ und $N=82$ ist aus den Daten ersichtlich. Der Schaleneffekt scheint jedoch einen geringeren Einfluß auf die Ladungsverteilung auszuüben als die beiden erstgenannten Effekte.

Inhalt

	Seite
1. Einleitung	1
2. Radiochemische Ausbeutemessungen	17
2. 1. Experimenteller Teil	19
2. 1. 1. Bestrahlungs- und Transporteinrichtung und Probenbereitung	19
2. 1. 2. Chemische Trennung	21
2. 1. 2. 1. Automatische Trennapparatur	21
2. 1. 2. 2. Natriumborhydridverfahren	23
2. 1. 2. 3. Zink/Salzsäure-Verfahren	25
2. 1. 3. Absorption der Hydride und Weiterverarbeitung	25
2. 1. 3. 1. Natriumborhydridverfahren	25
2. 1. 3. 2. Zink/Salzsäure-Verfahren	28
2. 1. 3. 3. Direkte γ -spektrometrische Messung von Zinn und Antimon	28
2. 1. 4. Bestimmung der relativen Menge spaltbaren Cf-249	29
2. 1. 5. Verwendete Meßgeräte	30
2. 1. 6. Allgemeine Auswertemethoden	32
2. 1. 6. 1. Analyse der γ -Spektren	32
2. 1. 6. 2. Bestimmung der Halbwertszeiten und Anfangsaktivitäten	35
2. 1. 6. 3. Analyse von komplexen γ -Linien	35
2. 2. Auswertung und Ergebnisse	38
2. 2. 1. Verhältnis $^{132}_{51}\text{Sb}(8^-)/^{132}_{51}\text{Sb}(4^+)$ bei der Spaltung von U-235, Pu-239 und Cf-249 mit thermischen Neutronen	38
2. 2. 2. Fraktionale Ausbeuten von Sn-132 (fc), Sb-132 (fi) und Te-132 (fi) bei Pu-239 ($n_{th,f}$)	44
2. 2. 3. Ausbeuten der Nuklide Sn-131, Sb-133 und Sb-134 bei Pu-239($n_{th,f}$)	53
2. 2. 4. Bestimmung der Ausbeuten von Sn-132, Sb-132, Sb-133 und Sb-134 bei Cf-249 ($n_{th,f}$)	57

	Seite
2. 2. 5.	Diskussion der Ergebnisse 58
3.	Ladungsverteilung in der Kette-132 als Funktion der Rückstoßenergie und der Ionenladung der Spaltpro- dukte bei U-235 ($n_{th,f}$) 71
3. 1.	Verhältnis der fraktionalen Aus- beuten von Zinn zu Antimon als Funktion der Reichweite der Spaltfragmente der Kette-132 bei U-235 ($n_{th,f}$) 74
3. 2.	Untersuchung der Energie und Ladungsabhängigkeit der fraktio- nalen Ausbeuten in der Kette-132 bei U-235 ($n_{th,f}$) am Massensepara- tor Lohengrin in Grenoble 81
3. 2. 1.	Massenseparator Lohengrin 83
3. 2. 2.	Uran-235-Target 88
3. 2. 3.	Endlosbandsystem und Zick-Zack- Mechanismus 91
3. 2. 4.	Meß- und Steuerelektronik 93
3. 2. 5.	Eichmessungen 95
3. 2. 6.	Arbeitsbereich der verwendeten Targets 104
3. 2. 7.	Auswertung 108
3. 2. 7. 1.	Auswertung der γ -Spektren 108
3. 2. 7. 2.	Bestimmung der Erzeugungsrate der Nuklide 108
3. 2. 8.	Ergebnisse 114
3. 2. 9.	Diskussion 119
3. 2. 9. 1.	Ladungsverteilung in der Kette-132 als Funktion der Ionenladung 119
3. 2. 9. 2.	Ladungsverteilung in der Kette-132 als Funktion der Rückstoßenergie der Fragmente 123

	Seite
4. Zusammenfassende Diskussion der Arbeit	138
Literaturverzeichnis	140
Anhang I : Zerfallseigenschaften der Nuklide der Kette-132	146
Anhang II : Rechenprogramm zur Ermittlung der Bildungsraten der untersuchten Nuklide	150
Anhang III : Transfer von Grenoble-Spektren auf ein an der CD 3300 verarbeitbares Magnetband	158

Tabellenverzeichnis

Tabelle		Seite
1	Experimentelle Ergebnisse der Ladungsverteilung in der Kette-132 bei der Untersuchung verschiedener Spaltungsreaktionen	13
2	Trennzeitprogramm nach dem NaBH_4 -Verfahren	24
3	Trennzeitprogramm nach dem Zink/Salzsäure-Verfahren	26
4	Eigenschaften der verwendeten Ge(Li) -Detektoren	31
5	Isomerenverhältnis $^{132}\text{Sb}(8^-)/^{132}\text{Sb}(4^+)$ bei U-235 (n_{th}, f)	40
6	Isomerenverhältnis $^{132}\text{Sb}(8^-)/^{132}\text{Sb}(4^+)$ bei Pu-239 (n_{th}, f)	41
7	Isomerenverhältnis $^{132}\text{Sb}(8^-)/^{132}\text{Sb}(4^+)$ bei Cf-249 (n_{th}, f)	42
8	Experimentelle Ergebnisse zur Bestimmung der Ladungsverteilung in der Kette-132 bei Pu-239 (n_{th}, f)	46
9	Experimentelle Ergebnisse der Bestimmung der Ladungsverteilung mit der direkten γ -spektroskopischen Meßmethode	51
10	Zusammenfassung der fraktionalen Ausbeuten der Nuklide der Kette-132 bei der Spaltung von Pu-239 mit thermischen Neutronen	52
11	Experimentelle Ergebnisse, Literaturwerte und Resultate der Bestimmung der Ausbeuten von Sn-131, Sb-133 und Sb-134 bei Pu-239 (n_{th}, f)	55

12	Experimentelle Ergebnisse, Literaturwerte und Resultate der Bestimmung der Ausbeuten bei Cf-249 ($n_{th,f}$)	56
13	Charakteristische Größen für die Ladungsverteilung in der Kette-132 bei Pu-239 ($n_{th,f}$) und Cf-249 ($n_{th,f}$)	60
14	Zusammenfassung der Ausbeuten in den Ketten 131 bis 134 bei Pu-239 ($n_{th,f}$) und Cf-249 ($n_{th,f}$)	64
15	Zusammenfassung der berechneten wahrscheinlichsten Kernladungen und der Ladungsverschiebung für die Ketten 131 bis 134 bei Pu-239 ($n_{th,f}$)	65
16	Zusammenfassung der bisher vorliegenden fraktionalen Ausbeuten bei Cf-249 ($n_{th,f}$)	70
17	Zusammenfassung der experimentellen Ergebnisse zur Bestimmung der Ladungsverteilung in der Kette-132 als Funktion der Reichweite der Spaltprodukte	77
18	Zusammenstellung einiger ionenoptischer Daten für den Massenseparator Lohengrin	85
19	Bestimmung des Arbeitsbereiches für das 400 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ -Target von A = 132 - 135	107
20	Zusammenfassung der Versuchsbedingungen und Meßergebnisse zur Bestimmung der fraktionalen Ausbeuten in der Kette-132 als Funktion der Rückstoßenergie und Ionenladung der Fragmente	115
21	Bildungsraten der Nuklide mit A = 132 als Funktion der Rückstoßenergie und Ionenladung der Fragmente	116

Tabelle		Seite
22	fraktionale Ausbeuten [%] als Funktion der kinetischen Energie der Fragmente bei verschiedenen Targetdicken und einer Ionenladung von $Q = 23^+$	117
23	fraktionale Ausbeuten der Nuklide der Kette-132 als Funktion der Ionenladung	118
24	Wahrscheinlichste Kernladung Z_p in der Kette-132 bei U-235 ($n_{th,f}$) als Funktion der Ionenladung	121
25	Zusammenfassung der mittleren experimentellen Rückstoßenergien der Nuklide der Kette-132 in beiden Targets ($Q = 23^+$)	124
26	Wahrscheinlichste Kernladung Z_p in der Kette-132 als Funktion der Rückstoßenergie der Fragmente	131
27	γ -Linien und γ -Linienintensitäten aus dem Zerfall des 38.9 s Sn-132	147
28	γ -Linien und γ -Linienintensitäten aus dem Zerfall des 2.8 min Sb-132(4^+)	148
29	γ -Linien und γ -Linienintensitäten aus dem Zerfall des 4.2 min Sb-132 (8^-)	149

Abbildungsverzeichnis

Abbildung		Seite
1	Massenausbeutekurven der Spaltfragmente für einige Spaltungsreaktionen	4
2	Ladungsverschiebung bei U-235 ($n_{th,f}$)	7
3	gerade-ungerade-Effekt als Funktion von Z und N im leichten Ast	9
4	Übersicht über die Kette-132	12
5	Automatische Trennapparatur zur Hydridverflüchtigung nach dem Natriumtetraboranat- bzw. Zink/Salzsäure-Verfahren	22
6	Bestimmung des Isomerenverhältnisses $Sb(8^-)/Sb(4^+)$ durch graphische Zerlegung der γ -Linien bei 696.8 keV und 973.9 keV	36
7	Fraktionale Ausbeuten der Kette-132 bei Pu-239 ($n_{th,f}$) und Cf-249 ($n_{th,f}$)	59
8	Massenausbeutekurven für Cf-249 ($n_{th,f}$)	63
9	Ladungsverschiebung bei Pu-239 ($n_{th,f}$)	68
10	Ladungsverschiebung bei Cf-249 ($n_{th,f}$)	69
11	Verhältnis der Ausbeuten Sn-132/Sb-132 als Funktion der Rückstoßausbeute	79
12	Aufbau des Massenseparators Lohengrin	84
13	Massenseparator Lohengrin - Austrittsfenster und Sammelzonen	86
14	Änderung der Eigenschaften eines dünnen Targets während des Betriebes	89
15	Intensitätsverlust eines dünnen Targets während des Betriebes	90

Abbildung		Seite
16	Zick-Zack-Mechanismus und Endlosband- gerät	92
17	System Nicole	94
18	Austrittsfenster des Separators- Abgren- zung der Sammelzone	97
19	Intensitätsverteilung entlang des 720 mm langen Austrittsspalt es bei verschiedenen Energien	98
20	Nachweiswahrscheinlichkeit des Systems Ge(Li)-Detektor-Zick-Zack-Mechanismus in Abhängigkeit vom Ort der Aktivität im Zick-Zack-Mechanismus	100
21	Nachweiswahrscheinlichkeit des Ge(Li)- Detektors für eine auf Band gestrahlte La-142-Aktivität	102
22	Absolute Nachweiswahrscheinlichkeit des Systems Ge(Li)-Detektor-Zick-Zack- Mechanismus	103
23	Arbeitsbereich bei Verwendung eines dicken Targets	105
24	Schematische Darstellung der Sammlung und Messung bei kontinuierlichem Bandlauf	110
25	Fraktionale Ausbeuten in der Kette-132 als Funktion der Ionenladung der Fragmente	120
26	Wahrscheinlichste Kernladung als Funktion der Ionenladung	122
27	Bildungsraten der Nuklide als Funktion der Rückstoßenergie	125

Abbildung		Seite
28	Fraktionale Ausbeuten als Funktion der Rückstoßenergie der Fragmente	127
29	Verhältnis der fraktionalen Ausbeute von den Antimon-132-Isomeren und Tellur-132 zu Zinn-132	128
30	Verhältnis des 4.2 min $^{132}\text{Sb}(8^-)$ zum 2.8 min $^{132}\text{Sb}(4^+)$ als Funktion der Rückstoßenergie	129
31	Darstellung Z_p als Funktion der Rückstoßenergie	134
32	Ladungsverteilung in der Kette-132 bei verschiedenen Rückstoßenergien	135
33	Absolute Ausbeuten der Kette-132 bei U-235 (n_{th}, f) als Funktion der Rückstoßenergie	136

1. Einleitung

Die Nutzung der Kernenergie zur Stromerzeugung soll in den kommenden Jahren neben der Energiegewinnung aus fossilen Brennstoffen stärker gefördert werden.

Während beim Betrieb von Kernreaktoren die Spaltung technisch genutzt und ökonomisch ausgeschöpft wird, liegen unsere Kenntnisse über den Ablauf der Kernspaltung noch weitgehend im Dunkeln.

Die Spaltung von Uran-235, Plutonium-239 und Thorium-232 und die bei diesem Prozeß freiwerdende Energie von 160-200 MeV wird dabei genutzt.

Experimentell ist die Spaltung von Uran-235 mit thermischen Neutronen am besten untersucht. Erst langsam werden die Messungen auch auf andere Spaltmaterialien, wie Pu-239, U-233, Cf-249, Cf-252 etc., ausgeweitet.

Trotz der bisher vorliegenden experimentellen Daten ist es noch nicht gelungen, ein theoretisches Modell zu finden, das alle Phänomene der Kernspaltung, wie z.B. die Asymmetrie der Spaltung, beschreibt.

Zwar wurden mehrere theoretische Modelle des spaltenden Kerns entwickelt [1, 2], die jeweils einige dieser Erscheinungen erläutern können, aber keine dieser Betrachtungen vermag, allen experimentellen Befunden gerecht zu werden.

Zur Aufstellung eines allgemeingültigen Modells sind deshalb weitere systematische Messungen neben U-235(n_{th}), auch bei anderen Spaltungsreaktionen erforderlich. Allgemein sind Untersuchungen der Energieverteilung, der Massenausbeuten und der Ladungsverteilung sehr interessant und wichtig, da sie Aussagen über die kollektive Anregung der Kerne am Spalt Punkt, die Aufheizung der Fragmente, sowie die Frage nach dem Ablauf

der Spaltung beantworten helfen.

Besonderes Augenmerk fällt dabei auf die Einflüsse, die von der Emission prompter Neutronen, von der Nukleonenpaarung und von abgeschlossenen Protonen- und Neutronenschalen stammen. [3, 4]

Massenausbeute und Ladungsverteilung

Die ersten genaueren Messungen der Kernspaltung bezogen sich auf die Massenausbeuten der Spaltfragmente. Ergebnisse dieser Untersuchungen liegen für die meisten Spaltungsreaktionen mit relativ großer Genauigkeit vor.

Die doppelhöckrickigen Massenverteilungskurven weisen ein wahrscheinlichstes Massenverhältnis der Spaltprodukte von 2 : 3 auf.

Während das Maximum des schweren Astes mit wachsender Compoundkernmasse relativ konstant bleibt und dessen niederenergetische Flanke mit der Masse $A = 132$ zusammenfällt, verschiebt sich der leichte Zweig zu schweren Massen hin. Beispiele von Massenausbeutekurven für verschiedene Spaltmaterialien sind in Abbildung 1 aufgetragen.

Neben der Masse, der Summe von Protonen und Neutronen, interessiert, wie sich Protonen und Neutronen auf die entstehenden Fragmente verteilen.

Die gebildeten Kerne weisen einen hohen Neutronenüberschuß auf, der durch die Abdampfung prompter Neutronen aus den Fragmenten ausgeglichen wird. Außerdem erleidet ein Spaltfragment noch 3-4 β -Zerfälle, bis es in einen stabilen Kern übergeht.

Die Messung der Ladungsverteilung bezieht sich auf Spaltprodukte vor dem β^- -Zerfall und beschreibt, wie sich die Spaltprodukte einer Kette als Funktion ihrer Kernladung Z verteilen.

Häufig wird zur Beschreibung einer Spaltproduktkette eine Gauß'sche Normalverteilung herangezogen [3] deren charakteristische Größen die wahrscheinlichste Kernladung Z_p und die Breite der Verteilung σ sind.

Gleichung 1 gibt die differenzierte Normalverteilungsfunktion wieder:

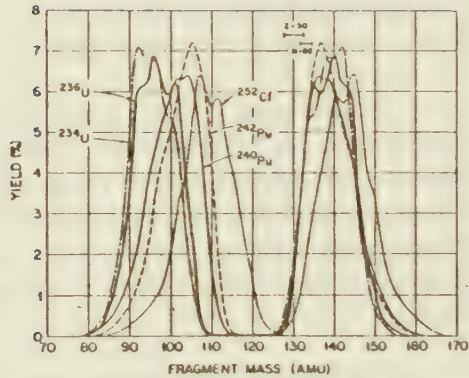


Abb. 1

Massenausbeutekurven der Spaltfragmente (vor Abdampfung prompter Neutronen) für einige Spaltungsreaktionen; aus H. W. Schmitt [57] (Angezeigt sind die Verbundkerne)

$$y_i = 1/(\pi c)^{1/2} \cdot e^{-(Z_i - Z_p)^2/c} \quad 1)$$

Es bedeuten: y_i Häufigkeit des Nuklides Z_i
 c Standardabweichung, die mit σ näherungsweise über die Beziehung (Gleichung 2) zusammenhängt:

$$c = 2 (\sigma^2 + 1/12) \quad 2)$$

Z_p wahrscheinlichste Kernladung

Für σ wird meistens ein Wert von $\sigma = 0.56 \pm 0.06$ [3] oder $\sigma = 0.59 \pm 0.06$ [6] empfohlen.

Neben dieser Betrachtung der Ladungsverteilung als Gaußfunktion nehmen manche Autoren [7, 8] zur Beschreibung eine diskrete Verteilung der Kettenglieder an. Die für eine Verteilung charakteristischen Werte errechnen sie in Analogie zum physikalischen Schwerpunkt (Z_p) und zum Drehmoment (σ) [9]. Die Bestimmungsgleichungen sind im folgenden (Gleichung 3 und 4) angegeben:

$$Z_p = \sum_i Z_i \cdot f(Z_i) \quad 3)$$

$$\sigma^2 = \sum_i (Z_i - Z_p)^2 \cdot f(Z_i) \quad 4)$$

Der Unterschied beider Methoden ist nicht sehr groß. Bei den Radiochemikern wird allgemein die von Wahl [3] vorgeschlagene Normalverteilung angewendet.

Die wahrscheinlichste Kernladung Z_p als Funktion der Kernmasse A kann als Abweichung vom Z_{UCD} - Wert (Unchanged Charge Density) beschrieben werden [10].

Hierbei nimmt man an, daß das Verhältnis Protonen zu Neutronen im entstehenden Fragment ($Z_{p,A}$) und im Compoundkern gleich ist (vgl. Gleichung 5):

$$Z_{UCD} = \frac{Z_F}{A_F} (A + v_A) \quad (5)$$

Der Index F bezieht sich auf den spaltenden Kern und v_A gibt die Anzahl abgedampfter prompter Neutronen für die untersuchte Masse A an.

Der Unterschied zwischen dem experimentellen Z_p -Wert und dem berechneten Z_{UCD} -Wert wird als Ladungsverschiebung ΔZ bezeichnet.

Ladungsverschiebungskurven, d.h. die Auftragung von ΔZ gegen die Fragmentmasse, liegen für U-235 ($n_{th,f}$), U-233 ($n_{th,f}$) und Pu-239 ($n_{th,f}$) vor.

Jedoch ist nur die Auftragung für U-235 ($n_{th,f}$) gut belegt. Diese Auftragung, die alle bisher vorliegenden Ausbeutewerte für die Spaltung von Uran-235 mit thermischen Neutronen beinhaltet, ist in Abbildung 2 dargestellt [11].

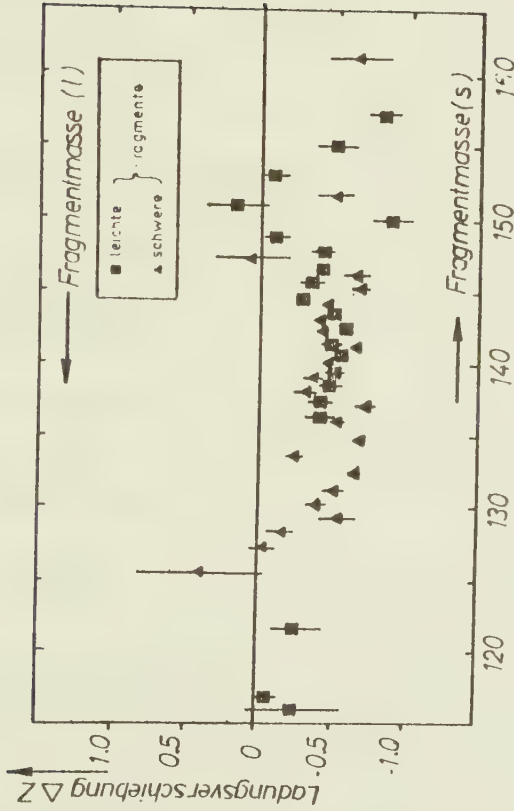


Abb. 2: Ladungsverschiebung bei der Spaltung von Uran-235 mit thermischen Neutronen aus [11]

Gerade - Ungerade und Schaleneffekte

Bei genauerer Betrachtung der Massen- und Ladungsverteilungskurven zeichnen sich Einflüsse der Neutronen und Protonenpaarung ab.

Bereits A. C. Wahl [3] und Grimm [12] weisen auf solche Gerade-Ungerade Effekte hin.

Systematische Untersuchungen der bisher vorliegenden Ausbeutedaten von Amiel et al. [5] weisen auf einen Protonenpaarungseffekt von $\pm 25\%$ hin.

Der Neutronenpaarungseffekt wirkt sich schwächer als die Protonenpaarung aus. Ein durchschnittlicher Wert von $\pm 8\%$ ergibt sich aus der Amiel'schen Systematik.

Diese Ergebnisse wurden besonders an den massenseparatorisch bestimmten Ausbeuten der Rubidium- und Caesiumisotope gezeigt [13].

Am Massenseparator 'Lohengrin' in Grenoble wurden Messungen im leichten Ast durchgeführt [7, 8, 14].

Die Ergebnisse von Clerc et al. [7, 14] und Siegert et al. [8] bestätigen den g-u-Einfluß auf die Spaltung von $U-235(n_{th}, f)$.

In Abbildung 3 sind die von Clerc gemessenen Protonen- und Neutronenpaarungseffekte aufgetragen.

Messungen bei höheren Fragmentenergien der Rückstoßprodukte, wie sie von Reisdorf et al. [15, 16] durchgeführt wurden und kürzlich von Wohlfahrt et al. [17] bestätigt wurden, zeigen eine ausgeprägtere Feinstruktur.

Als Grund dafür führt man an, daß die Spaltung bei niedrigen Anregungsenergien (d.h. hohen Rückstoßenergien der Fragmente) bevorzugt zu Ketten gerader Massen führt und diesen einen höheren Ausbeutewert liefert.

Bei niedrigen Rückstoßenergien der Fragmente scheint dieser Effekt durch die Emission der prompten Neutronen maskiert zu sein.

Neuerdings haben Lang et al. [18] die Paarungseffekte im leichten Ast auch bei Rückstoßenergien, die unter der mitt-

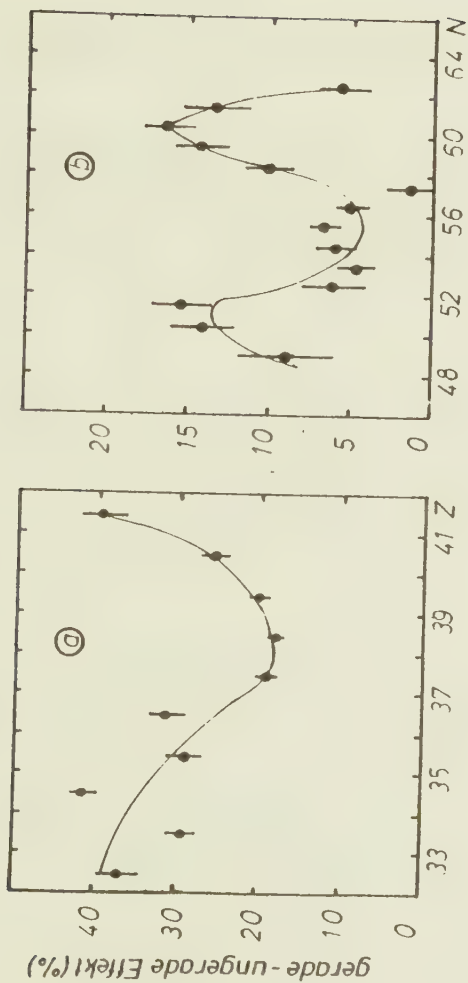


Abb 3 gerade - ungerade Effekt als Funktion von Z @ bzw N @ [14]

leren Energie der Kette liegen, nachgewiesen.

Neben dem Protonen- und Neutronenpaarungseffekt wurden auch Einflüsse abgeschlossener Nukleonenschalen nachgewiesen.

So zeigt sich bei der Analyse der Ladungsverschiebung, daß bei der Spaltung aller bisher untersuchten Spaltungsreaktionen fast kein Indium ($Z = 49$) entsteht [19]. Eine weitere Bestätigung dieser Tatsache ist, daß das bei der Spaltung von $U-235(n_{th}, f)$ zum Indium komplementäre Nuklid Technetium ($Z = 43$) keine merklichen Ausbeuten besitzt [7, 81].

Im Bereich der abgeschlossenen 50-Neutronenschale diskutieren Kratz et al. [21, 22] einen Schaleneffekt. Sie weisen jedoch darauf hin, daß aus Ergebnissen ihrer Messungen nicht klar ersichtlich ist, ob es sich um einen primären Schaleneffekt oder um einen sekundären Effekt handelt, der durch das Abdampfen der prompten Neutronen hergerufen wird.

Ähnliches zeigt sich auch bei der Untersuchung der $N = 8$ Schale. Das Nuklid $^{134}_{52}Te^{82}$ entsteht bei der Spaltung von $U-235(n_{th}, f)$ mit einer abnorm hohen Ausbeute ($f_c = 0.88$) [6], die sich wie verschiedene Autoren gezeigt haben, noch stärker ausprägt, wenn man zu niederen Anregungsebenen übergeht. Aus Messungen von Faubel et al. [23], Clerc et al. [7] und Reisdorf [15, 16] geht hervor, daß es sich sowohl um einen primären als auch um einen sekundären Effekt handelt.

Kette - 132 und bisherige Ergebnisse

Die relativ unveränderte Lage des Maximums des schweren Astes der Massenausbeute und das Zusammenfallen der inneren Flanke der Fragmentverteilung wird, wie berichtet auf den Einfluß der Masse $A = 132$ zurückgeführt und daß besonders auf das dort auftretende doppelt magische Nuk

$^{132}_{50}\text{Sn}^{82}$. Dieses Nuklid besitzt zwei abgeschlossene Nukleonenschalen, $Z = 50$ und $N = 82$, und wird deshalb von vielen Autoren für die asymmetrische Kernspaltung verantwortlich gemacht.

Ein wichtiger Grund für diese Deutung ist wohl, daß in mehr als 90 % der im schweren Ast gebildeten Fragmente die Struktur $Z = 50$ und $N = 82$ erhalten bleibt.

Die Spaltproduktkette $A = 132$ ist in Abbildung 4 dargestellt, eine ausführliche Beschreibung der Eigenschaften der Kerne befindet sich im Anhang.

Experimentell ist das Gebiet um Zinn-132 besonders bei der durch thermische Neutronen induzierten Spaltung von Uran-235 untersucht worden. Daneben liegen auch Messungen der Ladungsverteilung in $A = 132$ bei $\text{U-233}(n_{\text{th}},f)$ [24], $\text{Pu-239}(n_{\text{th}},f)$ [25] und $\text{Cf-249}(n_{\text{th}},f)$ [26] vor.

Betrachtet man die in Tabelle 1 zusammengefaßten Ausbeuten genauer, so stellt sich heraus, daß widersprüchliche Ergebnisse vorliegen.

Gegensätzliche Ausbeutedaten existieren bei der Spaltung von U-235 mit thermischen Neutronen.

Messungen von Konecny et al. [27] bei $\text{U-235}(n_{\text{th}},f)$ und Gunther et al. [25] bei $\text{Pu-239}(n_{\text{th}},f)$ ergeben eine sehr 'anomale' Ladungsverteilung mit einer fraktionalen Zinnausbeute von ca. 80 % (fc).

Davon stark verschiedene Werte legten Naeumann et al. [24] vor, die nur eine fraktionale Zinnausbeute von 13.7 % (fc) fanden.

Bei genauerer Betrachtung der Versuchsbedingungen in [25] und [27] stellt sich heraus, daß die Autoren bei der massenseparatorischen Isolierung der Kette-132 über der mittleren Energie der Kette gearbeitet und eine diskrete Ionenladung der Fragmente gewählt haben.

Es zeigt sich jedoch, wie aus bereits besprochenen Messungen hervorgeht [7, 8, 14 - 18], daß bei höheren Rückstoßenergien der Fragmente Feinstrukturen stärker betont

Abb. 4 Übersicht über die Kette -132

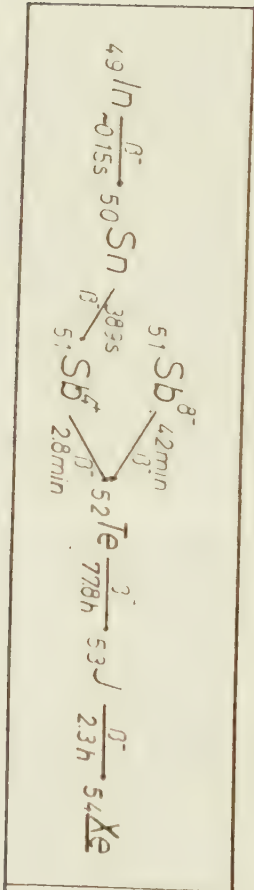


Tabelle 1: Experimentelle Ergebnisse der Ladungsverteilung in der Kette-132 bei der Untersuchung verschiedener Spaltungsreaktionen

Spaltungs- reaktion	fraktionale Ausbeute (%)				Z _p	Ref.
	49In	50Sn	51Sb	52Te		
U-235(n _{th} ,f)	20 ⁱ	60 ⁱ	20 ⁱ	--	--	27
U-235(n _{th} ,f)	--	13.7 ^{±0.8c}	48.8 ^{±1.0ⁱ}	37.6 ^{±1.5ⁱ}	51.28	24
U-235(n _{th} ,f)	--	--	--	--	51.14	7
U-233(n _{th} ,f)	--	2.5 ^{±0.5c}	27.1 ^{±3.0ⁱ}	64.4 ^{±4.0ⁱ}	51.75	24
Pu-239(n _{th} ,f)	27 ⁱ	61 ⁱ	--	2 ⁱ		25
Cf-249(n _{th} ,f)	--	--	--	76 ± 2 ^c		26

oberer Index i: fraktional unabhängige Ausbeute
c: fraktional kumulierte Ausbeute

werden.

Höhere Rückstoßenergien bedeuten niedrigere Anregungsenergien und somit eine bevorzugte Bildung von g , g -Kernen bzw. Kernen mit abgeschlossenen Nukleonenschalen [23] und eine Verminderung der Emission prompter Neutronen, was zu einer höheren Zinn - Ausbeute führen würde.

Radiochemische Messungen dagegen liefern Ausbeuten, die über sämtliche Ionenladungen und Rückstoßenergien gemittelt sind.

Ziele und Aufbau der vorliegenden Arbeit

Zunächst sollte der extrem hohe Ausbeutewert von Sn-132, von mehr als 80 % kumulierter Kettenausbeute, wie er von Gunther et al. [25] bei Pu-239(n_{th},f) gefunden wurde, radiochemisch überprüft werden.

Die radiochemische Bestimmung der Ausbeuten in der Kette A=132 wurde auf die Spaltung von Cf-249 mit thermischen Neutronen ausgedehnt um zu prüfen, ob die unterschiedlichen, zum Zinn komplementären Kerne und ihre Eigenschaften sich auf die Ausbeuten auswirken, wie es in einem ähnlichen Fall von Reisdorf et al. [15] und Wohlfahrt et al. [17] diskutiert wurde.

Nachdem sich zeigte, daß im Fall der Reaktion Pu-239(n_{th},f), wie bei U-235(n_{th},f) [24, 27], die außerordentlich hohen massenseparatorisch gemessenen Werte radiochemisch nicht reproduziert werden können, bestand das Interesse zu untersuchen, ob diese immer wieder auftretende Diskrepanz grundsätzliche Ursachen hat, wie eine starke Abhängigkeit der Kernladungsverteilung von der Ladung der im Massenseparator abgetrennten Fragmenten oder von ihrer Rückstoßenergie.

Die letzte Möglichkeit hat grundsätzliche Bedeutung für das Verständnis der Kernspaltung, wie bereits oben angesprochen wurde.

Es wurden zuerst Vorversuche durchgeführt, deren Ziel es war, das Verhältnis der fraktionalen Zinn- und Antimonausbeuten als Funktion der Reichweite der Spaltfragmente zu untersuchen.

Nachdem der Massenseparator ' Lohengrin ' zur Verfügung stand, wurde die Ladungsverteilung der Kette-132 dort in Abhängigkeit von der Energie und Ionenladung, mit der die Fragmente das Target verlassen, gemessen.

Entsprechend ergaben sich für die vorliegende Arbeit zwei Teile:

1. Radiochemische Messung der Ladungsverteilung bei $\text{Pu-239}(n_{\text{th}},f)$ und $\text{Cf-249}(n_{\text{th}},f)$
2. Untersuchung der Ladungsverteilung in der $\text{Ke } A=132$ als Funktion der Rückstoßenergie und I ladung der Fragmente (einschließlich der Vo suche bezüglich der Reichweite).

Beide Teile werden im folgenden nacheinander (Kap. und 3) dargestellt.

2. Radiochemische Ausbeutemessungen

Prinzip der Messungen

Nuklide, die weit entfernt von der Linie der β^- -Stabilität liegen, besitzen sehr kurze Halbwertszeiten (im Bereich von wenigen Sekunden). Ihre Isolierung aus dem Gemisch der Spaltprodukte kann nur mit schnellen chemischen Trennmethoden durchgeführt werden.

Die Methode beruht auf der Verflüchtigung der Hydride von Zinn, Antimon und Tellur neben Arsen und Selen. Ihre Grundzüge wurden bereits früher [28 - 30] beschrieben.

Die Hydride bilden sich bei der Zersetzung von Natrium-tetraboranat im sauren Medium oder bei der Reaktion von elementarem Zink mit Salzsäure. Je nach den Versuchsbedingungen werden innerhalb einer Sekunde, wie von Folger [29] gezeigt, bis zu 99 % eines Nuklides verflüchtigt.

Bei Verwendung einer automatischen Trennapparatur, die mit einer elektronischen Uhr gesteuert wird und deren Funktionen mit Preßluftventilen und Hähnen bedient werden, sind Trennzeiten bis zu 1.5 s erreichbar [28, 29].

Nach der Bildung der Hydride werden diese mit einem Gasstrom aus dem Reaktionsgefäß in die verschiedenen Absorptionsfallen transportiert und können dort weiterverarbeitet werden.

Für die Untersuchung der Spaltungsreaktionen von U-235 und Pu-239 wurde eine wäßrige Lösung des Spaltmaterials in eine Kapsel eingeschweißt und mit thermischen Neutronen bestrahlt. Die Spaltproduktlösung wird mit Hilfe von zwei Spritzenkanülen aus der Bestrahlungskapsel in die speziell entwickelte Trennapparatur entleert.

Untersuchungen mit dem Californiumtarget mußten mit einem umgearbeiteten Trennmechanismus durchgeführt werden. Die Spaltrückstoßprodukte die aus dem Target austreten

anschließend in die Trennapparatur gespült.

In den bei beiden Trennvarianten entstehenden Fraktionen sind die Isobarenglieder der Kette-132 selektiv aufgetrennt. Nach dem Zerfall aller Vorläufer in Jod-132 werden die Fallen gespült und die Ausbeuten γ -spektrometrisch bestimmt.

Neben der Ausbeutebestimmung über die Isolierung des Jod-132 können die Nuklide Zinn und Antimon direkt nach der Verflüchtigung in einer gemeinsamen Falle festgehalten und γ -spektrometrisch vermessen werden.

2. 1. Experimenteller Teil

2. 1. 1. Bestrahlungs- und Transporteinrichtung und Probenbereitung

Die Bestrahlungen wurden alle am Triga Mark II Reaktor des Instituts für Kernchemie der Universität Mainz durchgeführt.

Dieser Reaktor kann sowohl im Dauerbetrieb (Leistung 100KW ; Neutronenfluß $1.5 \cdot 10^{12} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$), als auch im Pulsbetrieb (maximale Leistung 250 MW; integrierter Fluß $4 \cdot 10^{13} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2}$) gefahren werden.

Pulsbestrahlungen (Halbwertsbreite des Pulses 30 ms) eignen sich besonders bei der Untersuchung von kurzlebigen Nukliden und Ausbeutemessungen.

Die bei Pulsbetrieb durchgeführten Bestrahlungen wurden in einem schnellen Rohrpostsystem gemacht, um möglichst kurze Transportzeiten der bestrahlten Probe in die Trennapparatur zu erhalten. Innerhalb von 0.3 s konnte die Bestrahlungskapsel in die Trennapparatur mittels Preßluft geschossen werden.

Die Bestrahlungen von U-235 und Pu-239* wurden in Lösung durchgeführt. Neben der Spaltmateriallösung enthielt die Bestrahlungskapsel langlebige Indikatoren zur Bestimmung der chemischen Trennausbeute und inaktiven Träger (1 - 10 $\mu\text{g/ml}$ Sn^{2+} , Sb^{3+} , Te^{2+}).

Das Volumen des Kapselinhaltes wurde mit Salzsäure auf 1 ml gebracht.

*

Wegen der Gefährlichkeit des Arbeitens mit Pu-239 wurde auf ein vollständiges Vertreiben der HNO_3 aus der Stammlösung verzichtet, obwohl bekannterweise die Anwesenheit von Oxidationsmitteln zu niedrigeren

Als langlebige Indikatoren wurden verwendet:

Sn-113 ($T_{1/2}=115$ d; β^+ -Strahler)

Sb-124 ($T_{1/2}= 60.4$ d; β^-)

Te-127 ($T_{1/2}=109$ d; β^-)

(eingesetzte Menge 10 bis 30 μCi).

Die Konzentration der salzsauren Lösung in der Kapsel war von der Art der Verflüchtigung abhängig.

Die Verflüchtigung nach dem Zink/Salzsäure-Verfahren erforderte 9 n salzsaures Medium, während das Natrium-tetraboranat bereits in 1 n Salzsäure Hydride bildete.

Die Bestrahlung von Cf-249 konnte wegen des geringen Vorrates dieses Spaltmaterials nicht in Lösung geschehen.

Das Californium-Target besteht aus ca. 10 μg Cf-249 (Leihgabe des Oak Ridge National Laboratory), das auf einen Messingzylinder aufelektrolysiert und zum Schutz gegen mechanischen Abrieb und ' Sputtering ' mit einer dünnen Schicht Aluminium (10 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$) bedampft wurde.

Das Target wurde am Ende der schnellen Rohrpost angeflanscht[20].

Um die Spaltprodukte aufzufangen, die das Target infolge Rückstosses verlassen, wurde während der Bestrahlung in einer hülseförmigen Halterung aus Polycarbonat ein Ammoniumnitratcatcher über das Target geschoben.

Der Fänger bestand aus zwei Halbschalen, auf die 7 bis 10 mg/cm^2 Ammoniumnitrat aufgedampft war.

Die Verwendung von Ammoniumnitrat bot sich an, da bei der Bestrahlung mit thermischen Neutronen fast keine Fremdaktivitäten auftreten und das auf der Schale haftende Material leicht mit wässrigen Lösungen abgelöst werden konnte.

Die das Target verlassenden Spaltprodukte wurden in den

NH_4NO_3 -Catchern vollkommen absorbiert, da die Reichweite schwerer Spaltprodukte bei ca. 2.53 mg/cm^2 liegt [31].

Die Halterung mit den Halbschalen konnte, wie in [20] beschrieben mit einem Seilzug in den Reaktionskopf gezogen werden. Der Catchertransport erfolgte pneumatisch. Die Transportzeit betrug ca. 0.5 sec, danach wurde der Trennkopf mit den Fängerhalbschalen um 90° gedreht und von unten gespült.

Die Zugabe der langlebigen Indikatoren und der Träger erfolgte aus technischen Gründen erst mit der Spüllösung. Die eingesetzten Mengen entsprachen denen der Bestrahlung von Lösungen.

2. 1. 2. Chemische Trennung

2. 1. 2. 1. Automatische Trennapparatur

Die Trennapparaturen zur Isolierung von Zinn-, Antimon- und Tellurisotopen aus Spaltproduktgemischen für Uran und Plutonium und Californium unterscheiden sich nur durch den Trennkopf. Die anschließende chemische Trennung läuft bei allen Experimenten gleich ab.

Die Verflüchtigungsapparatur, wie sie sowohl für das Borhydrid- als auch Zink/Salzsäureverfahren verwendet wurde, ist in Abbildung 5 schematisch dargestellt. Die verschiedenen Trennköpfe sind gesondert dargestellt.

Der Körper der Apparatur besteht aus Plexiglas, die Hähne zur Steuerung sind aus Teflon gefertigt.

Die Kapsel mit der bestrahlten Probe wird über das schnelle Rohrpostsystem mit Preßluft (2 - 3 atü N_2) aus der Bestrahlungsposition in den Trennkopf der Apparatur geschossen.

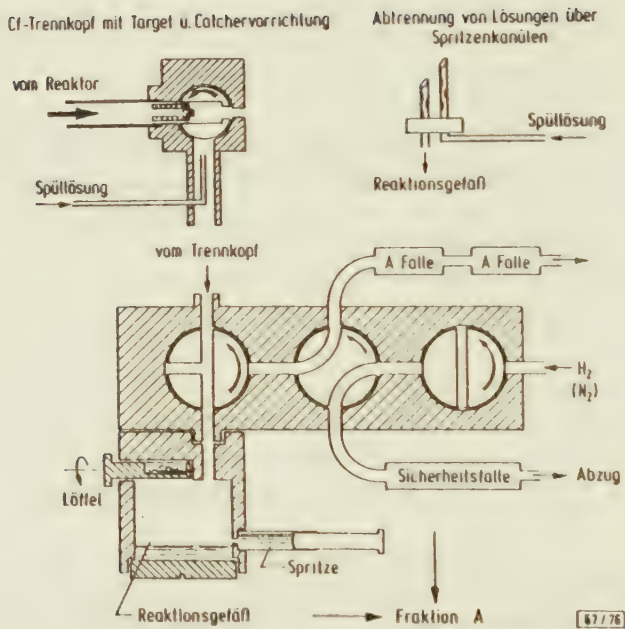


Abb. 5: Automatische Trennapparatur zur Hydridverflüchtigung nach dem Natriumtetraborat- bzw. Zink/Salzsäure-Verfahren

Die Spaltprodukte gelangen nach Entleeren der Kapsel über Spritzenkanülen bzw. Waschen der Catcherhalbschalen in das Reaktionsgefäß. Nachdem das Reaktionsgefäß mittels eines Hahnes vom Abtrennsystem abgeschlossen wurde, schließt sich die eigentliche chemische Trennung an.

2. 1. 2. 2. Natriumborhydridverfahren

Beim Borhydridverfahren wird über die seitlich am Reaktionsgefäß angebrachte Spritze Natriumtetraboratlösung zugegeben. Die Lösung, 5 m Natriumborhydrid in 0.2 n Natronlauge, reagiert sofort mit der 1 n salzsauren Spaltproduktlösung. Der durch das saure Medium freigesetzte Wasserstoff bildet mit Zinn und Antimon die entsprechenden Hydride, SnH_2 und SbH_3 .

Die gebildeten Hydride werden durch den heftigen Wasserstoffstrom aus dem Reaktionsgefäß mitgerissen und in die Absorptionsfallen befördert. Neben Zinn und Antimon, die fast quantitativ reagieren, wird noch wenig Tellur mitgerissen und ebenfalls im Wasserstoffstrom mittransportiert. Als Verunreinigungen treten Arsen und Selen, die ebenfalls Hydride bilden, auf.

Das Abstoppen der Reaktion geschieht durch Zugabe zerstöbener Natriumhydroxidplättchen, mittels des seitlich angebrachten Löffels.

Mit einem Hahn, der den Weg der Hydride zu den Fallen unterbricht, werden die nachverflüchtigten Produkte in eine Sicherheitsfalle umgeleitet.

Der gesamte Trennvorgang dauert bei Verwendung von Lösungen vier Sekunden. Bei der Bestrahlung von Cf-249 verlängert sich dieser Zeitraum wegen des geänderten Trennkopfes um eine halbe Sekunde.

Das Trennzeitprogramm für das Natriumborhydridverfahren ist in Tabelle 2 für die beiden Möglichkeiten der Bestrah-

Tabelle 2: Trennzeitprogramm nach dem NaBH_4 -Verfahren

Zeitpunkt nach Pulsstart (sec)		Funktion
(Uran)	(Californium)	
0.1 - 0.6	0.1 - 0.6	Pulsbestrahlung der Probe im Reaktor Transport der Kapsel (Catcher) in den Trenn- kopf der Apparatur Spaltprodukte werden in das Reaktionsgefäß gespült Nachspülen der Kapsel mit Spüllösung Verschließen des Reaktionsgefäßes gegen den Trennkopf Zugabe von Natriumborhydrid mit der Spritze (aus Vorratsgefäß) Verflüchtigung der Hydride Zugabe des Reaktionsstoppers über Löffel Schließen des Reaktionsgefäßes mit Hahn, Umleitung der Hydride in Sicherheitsfalle, Nachspülen der Fallen mit Stickstoff Messbeginn
0.6 - 0.9	0.6 - 1.2	
0.9 - 1.5	1.2 - 1.7	
1.5 - 1.8	----	
1.8 - 2.0	1.8 - 2.0	
2.0 - 2.2	2.0 - 2.4	
2.2 - 3.5	2.4 - 3.7	
3.5 - 3.7	3.7 - 4.0	
3.7 - 3.9	4.0 - 4.5	
4.0	4.5	

2. 1. 2. 3. Zink/Salzsäure-Verfahren

Die Spaltprodukte, die über den Trennkopf in das Reaktionsgefäß gelangen, befinden sich in 9 n salzsaurem Medium. Über den Löffel am Reaktionsgefäß wird Zinkstaub, vermischt mit Zinkspänen, zur Spaltproduktlösung gegeben. Der unmittelbar entwickelte Wasserstoff bildet die Hydride von Antimon und Tellur, während fast kein Zinnhydrid entsteht.

Nach beendeter Trennung kann die Reaktion durch Zugabe von Oxidationsmitteln (hier Na_2CrO_4) abgestoppt werden. Die Abtrennung mit dieser Methode wurde hauptsächlich zur Isolierung einer reinen Antimonfraktion angewendet.

Diese Variante beansprucht Trennzeiten von vier Sekunden. Die Funktionen der automatischen Trennapparatur und das Zeitprogramm der Trennung sind in Tabelle 3 zusammengestellt.

2. 1. 3. Absorption der Hydride und Weiterverarbeitung

2. 1. 3. 1. Natriumborhydridverfahren

Absorption

Die im Reaktionsgefäß gebildeten Hydride werden mit dem gebildeten Wasserstoff und einem schwachen Stickstoffstrom in die der Apparatur angeschlossenen Absorptionsfallen befördert.

In einer Glaskugelfallröhre (Durchmesser 10 mm, Länge 60 mm) werden mitgerissene Flüssigkeitströpfchen und das Tellur festgehalten. Zur Absorption des Tellurhydrids genügen wenige Tropfen auf Quarzwolle aufgebrauchte 0.5 n Natronlauge als Füllmaterial der Falle.

Die resultierende Fraktion, die nur noch Zinn und Antimon enthält, wird im folgenden aufgetrennt.

Tabelle 3: Zeitlicher Ablauf der Hydridverflüchtigung nach dem Zink/Salzsäure Verfahren

Zeitpunkt nach Pulsstart (sec)		Funktion
(Uran)	(Californium)	
0.1 - 0.6	0.1 - 0.6	Pulsbestrahlung der Probe im Reaktor Transport Kapsel (Catcher) in den Trennkopf der Apparatur Spaltprodukte werden in das Reaktionsgefäß überführt Nachspülen der Kapsel mit Spüllösung Verschließen des Reaktionsgefäßes gegen den Trennkopf Zugabe des Zink mittels Löffel Hydridverflüchtigung Zugabe von Reaktionsstopper über Spritze (Vorratsgefäß) Schließen des Reaktionsgefäßes mit Hahn; Umleitung der Hydride in Sicherheitsfalle; Nachspülen der Fallen mit Stickstoff
0.6 - 0.9	0.6 - 1.2	
0.9 - 1.5	1.2 - 1.7	
1.5 - 1.8	-----	
1.8 - 2.0	1.8 - 2.0	
2.0 - 2.2	2.0 - 2.2	
2.2 - 3.5	2.2 - 3.5	
3.5 - 3.7	3.5 - 4.0	
3.7 - 4.0	4.0 - 4.5	

Eine reine Zinnfraktion wird dadurch erhalten, daß im Anschluß an die Tellurrückhaltefalle eine zweite Kugellohrfalle (Länge 100 mm) angeschlossen wird. In dieser Falle befindet sich Quarzwolle, die mit konzentrierter Kalilauge in Athanol (96 %) getränkt ist. Fast das gesamte Antimon und der größte Teil des Zinn werden hier gebunden. Höchstens 1 % Antimon und bis zu 10 % Zinn gelangen in die dritte Absorptionsfalle. Hier ist zur Absorption des Zinn halb konzentrierte Silbernitratlösung in Salpetersäure ebenfalls auf Quarzwolle aufgetragen.

Isolierung des Jod-132 und Messung

Die in den Fallen festgehaltene Aktivität wird mit Salpetersäure bzw. mit Königswasser von der Quarzwolle gewaschen. Die Vollständigkeit des Waschvorganges wird durch Messung in einem NaJ(Tl)-Bohrlochkristalldetektor kontrolliert. Nach dem Auswaschen wird die Lösung auf 50 ml eingengt und zur Messung der langlebigen Indikatoren, die, wie erwähnt, zur Bestimmung der chemischen Trennausbeuten eingesetzt wurden, in Spezialküvetten (Volumen 50 ml) abgefüllt.

Nach der Messung der Indikatoren wurde die Lösung neutralisiert und mit 10 mg J^- -Träger versetzt und ca. 24 h stehen lassen.

Daran schloß sich ein Oxidations-Reduktionscyclus zur Reinigung und Isolierung des Jods an. Dieses Verfahren ist in Anlehnung an Glendenin [32] entstanden.

Das in der zweiten Stufe des Reinigungszyclus erhaltene Jodid wurde als AgJ ausgefällt. Nach Trocknung des Niederschlages wurde die chemische Ausbeute der Jodextraktion durch Wägung ermittelt. Diese Trennausbeute lag in allen Versuchen über 80 %.

Jod-132 wurde γ -spektrometrisch über seine γ -Linien bei 668 und 773 keV bestimmt.

2. 1. 3. 2. Zink/Salzsäure-Verfahren

Die verflüchtigten Hydride von Antimon und Tellur und zu einem geringen Teil Zinn werden über eine Tellurfalle, die wiederum 0.5 n NaOH auf Quarzwolle enthält, geleitet. Das Tellur wird in dieser Falle (Beschreibung der Fallen s. Kap. 2. 1. 3. 1.) absorbiert, außerdem bleiben die geringen Mengen Zinn und die Aerosole in dieser Falle hängen, sodaß anschließend eine reine Antimonfraktion übrig bleibt.

Die Absorption des Antimons geschieht in der oben beschriebenen Weise an alkoholischer Kalilauge oder an Silbernitrat auf Quarzwolle.

Die Reinigung und Aufarbeitung der Fraktionen verläuft analog zum Natriumborhydridverfahren. Die Fallen werden ausgewaschen und die Menge gebildeter Kerne der abgetrennten Nuklide über das Jod-132 bestimmt.

2. 1. 3. 3. Direkte γ -spektrometrische Messung von Zinn und Antimon

Wie in 2. 1. 2. 2. beschrieben werden Zinn, Antimon und Tellur nach dem Natriumborhydridverfahren aus dem Spaltproduktgemisch abgetrennt und verflüchtigt.

An die Tellurrückhaltefalle, die gleichzeitig als Aerosol- und Spritzfalle dient und in der als Absorptionsmittel 0.5 n Natronlauge auf Quarzwolle aufgezogen ist, schließt sich eine Falle an, in der Zinn und Antimon gemeinsam absorbiert werden.

Diese Falle besteht aus einem 30 bis 50 mm langen Stück Polyäthylenschlauch (Durchmesser 6 mm), der mit Silber-

nitrat getränkter Quarzwolle gefüllt ist und in festem Abstand vor einem Ge(Li)-Detektor befestigt ist.

Sofort nach Beendigung der chemischen Trennung, 4 bzw. 4.5 s nach Bestrahlungsende, können Zinn und Antimon direkt γ -spektrometrisch gemessen werden. Die Abfälle der charakteristischen γ -Linien werden durch Vorwahl eines Meßzeitprogrammes über mehrere Halbwertszeiten verfolgt.

Die Meßanordnung und Auswertung der γ -Spektren werden weiter unten in dieser Arbeit besprochen (Kap. 2. 1. 5. ff.)

2. 1. 4. Bestimmung der relativen Menge spaltbaren Cf-249

Zur Ermittlung der Menge spaltbaren Cf-249 wurde aus dem Spaltproduktgemisch einer bestrahlten Probe eine reine Bariumfraktion als BaCl_2 abgetrennt.

Zur Reinigung von Lanthaniden wurde nach Lösung des Niederschlages eine Eisenscavengerfällung durchgeführt und das Barium endgültig als Chromat isoliert.

Die chemischen Trennausbeuten wurden durch Messung mit-abgetrennter Ba-133 Indikatoraktivität kontrolliert.

Die zu U-235 vergleichbare Menge spaltbaren Cf-249 erhält man durch den direkten Vergleich der aus beiden Spaltungsreaktionen abgetrennten Bariumfraktionen.

Die Bestimmung wurde durch γ -spektrometrische Messung der Ba-139 und Ba-141 Aktivität unter Berücksichtigung der fraktionalen kumulierten Ausbeuten dieser Nuklide vorgenommen.

2. 1. 5. Verwendete Meßgeräte

Für die Messung von γ -Einzelspektren wurden Ge(Li)-Detektoren verwendet. Indikatormessungen und die Bestimmung der Jod-132 Aktivität wurden teilweise auf NaJ(Tl)-Detektoren ausgeführt.

Für sämtliche eingesetzten Ge(Li)- Detektoren liegen relative Kurven für die Nachweiswahrscheinlichkeit vor. Diese Kurven wurden überprüft.

Da die chemischen Ausbeuten bei der schnellen Trennung nicht immer gleich waren, mußte der Abstand Probe-Detektor von Fall zu Fall der vorliegenden Aktivität angepaßt werden. Auf diese Weise konnte einerseits bei den notwendigerweise kurzen Meßzeiten immer eine ausreichende Zählstatistik erreicht werden, andererseits konnten Überladungsprobleme von Detektor und ' Analog-Digital-Converter ' vermieden werden.

Um dem wechselnden Abstand von der Detektoroberfläche Rechnung zu tragen, wurden die ' Efficiencykurven ' des Detektors Nr. 3 bei verschiedenem Abstand vermessen. Als γ -Quellen wurden: Co-57, Co-60, Ba-133, Y-88 und Cs-137 aus einem Standardsatz der Firma Ammersham - Buchler verwendet.

Die Eigenschaften der verwendeten Ge(Li)-Detektoren sind in Tab. 4 zusammengefaßt.

Die Detektorsignale werden nach der Vorverstärkung über einen Linearverstärker dem Analog-Digital-Converter zugeführt und die Ausgangsinformation der 'ADC's' wird in einem 4K bzw. 16 K Vielkanalanalysator gespeichert. Die Spektren können automatisch auf 7 Spur Magnetbandgeräten bzw. Lochstreifenstanzern ausgegeben werden.

In der Hauptsache wurden für schnelle Meßserien die Ampex Magnetbandgeräte verwendet. Die erhaltenen Daten wurden im Anschluß an die Meßserien an den Rechenanlagen PDP 11/45 bzw. CD 3300 ausgewertet.

Tabelle 4: Eigenschaften der verwendeten Ge(Li)-Detektoren

Detektor	Aktives Volumen (cm ³)	Halbwertsbreite (bei 1332 keV)	Peak zu Comptonverhältnis (1332 keV)	Nachweiswahrscheinlichkeit rel. zu ³ x ³ ' NaJ (1332 keV)
1	30	2.65	18 : 1	4.4 %
2	35	2.15	25 : 1	5.0 %
3	35	2.15	25 : 1	5.0 %
4	32	1.75	37 : 1	6.4 %

2. 1. 6. Allgemeine Auswertemethoden

2. 1. 6. 1. Analyse der γ -Spektren

Die γ -Einzelspektren wurden auf der Rechenanlage Control Data 3300 des Rechenzentrums der Universität Mainz bzw. auf der PDP 11/45 des Instituts für Kernchemie ausgewertet.

Der größte Teil der Spektren wurde mit je einer Version des Programms 'GSFIT' [33] auf der CD 3300 bzw. der PDP 11/45 bestimmt. Zum Anpassen an die experimentelle Peakform wird eine Gaußkurve mit einem niederenergetischen Ausläufer verwendet.

Bedeutung:

x_0	Kanallage des Maximums
Y_0	Amplitude des Maximums
h	Halbwertsbreite der γ -Linie

$$\alpha \begin{cases} = 0 & \text{für } x = x_0 - h/2 \\ > 0 & \text{für } x < x_0 - h/2 \end{cases}$$

$$x_m = (x_0 - x - h/2)/h$$

so beschreibt Gleichung 6 die experimentelle Form der γ -Linie:

$$Y = Y_0 \left[\exp(-\ln 2 \cdot (h/2)^{-2} \cdot (x-x_0)^2) + \alpha \cdot x_m \cdot \exp(-x_m) \right] \quad (6)$$

Mit Hilfe von Eichstandards bekannter Energien wurde auf der PDP 11/45 in einem Eichprogramm 'GSEICH' die Abhängigkeit der Halbwertsbreite und der Unsymmetrie der γ -Linien von der Energie bestimmt.

Die Umrechnung der Kanallage des Peakmaximums in die Energie geschieht mit einer Kurve vierter Ordnung. Mit Hilfe der aus 'GSEICH' erhaltenen Eichparameter wird im Hauptprogramm 'GSFIT' nach der Methode der kleinsten Fehlerquadrate die unbekannte γ -Linie ana-

lysiert. Als Ergebnis dieser Berechnung erhält man die Lage des Maximums und die Intensität der betreffenden γ -Linie.

Führt man 'GSFIT' an der Rechenanlage PDP 11/45 durch, so kann man neben der Güteziffer des 'Fits' über einen Kontrollmonitor die experimentell angepaßte Kurve und die Meßwerte vergleichen.

An der CD 3300 erhält man lediglich die Güteziffer für den gefitteten Peak.

Als Eichstandards wurden im allgemeinen Co-57, Co-60, Ba-133, Eu-152, Y-88 und Cs-137 verwendet.

Die Genauigkeit der Energieeichung beträgt je nach Intensität der zu berechnenden γ -Linie zwischen 0.05 und 0.2 keV [34].

Die Bestimmung von Energie und Inhalt einer γ -Linie mit Hilfe des 'GSFIT's an der PDP 11/45 geschieht durch die Markierung der Intervallgrenzen und der Maxima der γ -Linien in dem auf dem Kontrollmonitor dargestellten Spektrenausschnitt.

Der Fit kann beliebig oft mit verschiedenen Grenzen wiederholt werden.

Der Nachteil dieser Auswertemethode liegt in dem hohen Bedarf an Rechenzeit, der durch die hohe Auslastung der Rechenmaschine nicht immer befriedigt werden konnte.

An der CD 3300 werden alle Angaben, die Eichparameter, die Grenzen des 'Fitintervalls' und die Kanallage des Peakmaximums über Lochkarten dem Rechner zugeführt. Leider sind auch an dieser Maschine Langläufe (3 min.) nur in den Nachtstunden auswertbar, so daß auch hierbei Verzögerungen in der Auswertung einer Versuchsserie auftreten.

Für Auswertungen während einer laufenden Versuchsserie

eignet sich dieses Programm wegen seines hohen Zeitbedarfes nicht.

Deshalb wurde ein einfaches Programm entwickelt, das an beiden Rechenanlagen ohne hohen Zeitbedarf die Kanallage der Peakmaxima und den Peakinhalt durch Summierung der einzelnen Kanalinhalt unter der gefundenen γ -Linie ermittelt.

Die endgültige Auswertung wird dann im Anschluß an die Versuchsserie mit dem Programm 'GSFIT' vorgenommen.

Als Erweiterung der Programmbibliothek der PDP 11/45 wurde zur Bestimmung der reinen Peakinhalt das Programm 'INTEGRATE' entwickelt. In diesem Programm wird nach Eingabe des Anfangs- und Endkanals des Peaks, sowie der oberen und unteren Grenzen des Untergrundes durch Addition der Peakinhalt ermittelt. Der Untergrund wird durch lineare Subtraktion von den Kanalinhalt abgezogen.

2. 1. 6. 2. Bestimmung der Halbwertszeiten und Anfangsaktivitäten

Die Zerlegung der Zerfallskurven, die Bestimmung der Halbwertszeiten und der Anfangsaktivitäten erfolgten zunächst auf graphischem Wege.

Außerdem konnten die Halbwertszeiten und Anfangsaktivitäten mit dem Rechenprogramm 'LSFIT' an beiden zur Verfügung stehenden Rechenanlagen ermittelt werden. Programm 'LSFIT' ist in Anlehnung an das in [35] beschriebene Programm 'LINFIT' entstanden.

'LSFIT' ist ein Fortran-Programm, das nach der Methode der kleinsten Fehlerquadrate die Steigung und den Ordinatenabschnitt einer Geraden ermittelt.

Außerdem sieht dieses Programm eine statistische Wichtung über den Meßfehler vor.

Da die Steigung der Geraden bei Angabe des Logarithmus der Intensität und der Meßzeit der Zerfallskonstanten λ entspricht, kann hieraus die Halbwertszeit ermittelt werden. Die Anfangsaktivität kann direkt aus dem Ordinatenabschnitt übernommen werden.

Für die Analyse eines Mehrkomponentensystems ist dieses Programm nicht anwendbar, so daß man sich vor der Berechnung davon überzeugen muß, daß es sich um eine Einzellinie handelt.

Später bot sich für eine komplexe Zerfallskurve neben der rein graphischen Analyse das Programm 'ESAN' [36] an.

2. 1. 6. 3. Analyse von komplexen γ -Linien

γ -Linien, die aus zwei Komponenten ähnlicher Halbwertszeiten und ähnlicher Linienintensität zusammengesetzt sind, lassen sich nach einer Methode von Seyb [37] graphisch in die Komponenten zerlegen.

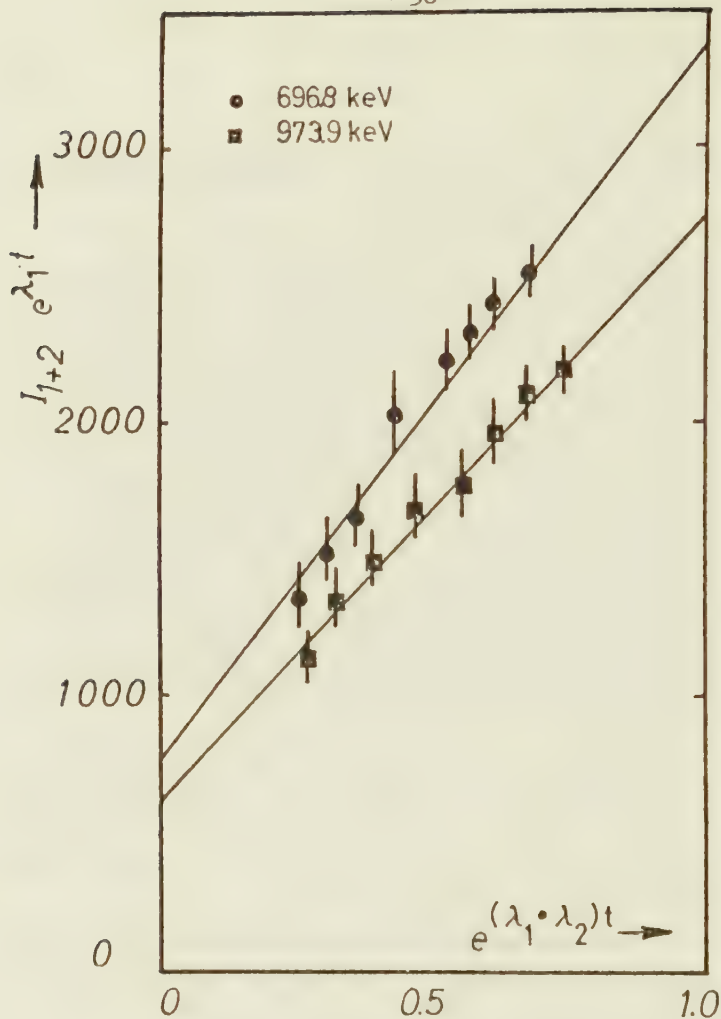


Abb.6: Bestimmung des Isomerenverhältnisses $\text{Sb}^{8-}/\text{Sb}^{4+}$ durch graphische Zerlegung der γ -Linien bei 696.8 keV und 973.9 keV nach [37]

Nach Gleichung 7 läßt sich eine solche komplexe γ -Linie dadurch graphisch zerlegen, daß man als Abszisse $\exp(\lambda_1 - \lambda_2) \cdot t$ und als Ordinate $I_{1+2}(t) \cdot \exp(\lambda_1 \cdot t)$ aufträgt.

$$I_{1+2}(t) \cdot \exp(\lambda_1 t) = I_1^0 + I_2^0 \cdot \exp(\lambda_1 - \lambda_2) \cdot t \quad (7)$$

Es bedeuten:

$I_{1+2}(t)$	zu Zeitpunkt t gemessene γ -Intensität
I_1^0	Anfangsaktivität der längerlebigen Komponenten
I_2^0	Anfangsaktivität der kürzerlebigen Komponenten
λ_1	Zerfallskonstante Komponente 1
λ_2	Zerfallskonstante Komponente 2

Die Auftragung ergibt eine Gerade, deren linker Ordinatenabschnitt I_1^0 und deren rechter I_{1+2}^0 darstellt. Die Auftragung nach dieser Auswertemethode ist weiter unten in Abbildung 6 exemplarisch dargestellt.

2. 2. Auswertung und Ergebnisse

2. 2. 1. Verhältnis $^{132}_{51}\text{Sb}(8^-)/^{132}_{51}\text{Sb}(4^+)$ bei der Spaltung von U-235, Pu-239 und Cf-249 mit thermischen Neutronen

Zunächst soll das Verhältnis der beiden Isomeren des Antimon-132 bei den drei Spaltungsreaktionen betrachtet werden.

Der Abfall der charakteristischen γ -Linien der beiden isomeren Zustände bei 696.8 keV (Linienhäufigkeit: (4^+) 87% und (8^-) 100%) und 973.9 keV (Linienhäufigkeit: (4^+) und (8^-) 100%) [79] einer nach dem Zink/Salzsäure-Verfahren (Kap. 2. 1. 2. 3.) erhaltenen Antimonfraktion wurde bis zu 20 min nach Bestrahlungsende verfolgt.

Die Aktivitäten der beiden Zustände, des langlebigen (8^-) Halbwertszeit 4.2 min [39, 79] und des kurzlebigen (4^+) Halbwertszeit 2.8 min [39, 79] zum Ende der Bestrahlung, wurden durch graphische Zerlegung der gemessenen Summenaktivitäten der beiden γ -Linien ermittelt. Die Bestimmung wurde nach dem in 2. 1. 6. 3. beschriebenen Verfahren durchgeführt.

In Abbildung 6 ist diese Auftragung anhand eines Plutonium-239-Experimentes exemplarisch dargestellt.

Wie in 2. 1. 6. 3. gezeigt stellt der linke Ordinatenabschnitt die Anfangsaktivität der längerlebigen Komponenten I_1^0 und der rechte Ordinatenabschnitt die Summe der Anfangsaktivitäten beider Komponenten I_{1+2}^0 dar.

Das Isomerenverhältnis wird mit Gleichung(8) aus den berechneten Anfangsaktivitäten I^0 und der Linienhäufigkeit H der isomeren Zustände ermittelt:

$$\text{Sb}(8^-)/\text{Sb}(4^+) = \frac{I^0(8^-) \cdot H_x(4^+)}{H_x(8^-) \cdot I^0(4^+)} \quad (8)$$

Wurde die chemische Trennung nach dem Natriumborhydridverfahren durchgeführt, so konnte unmittelbar nach der chemischen Trennung nur eine gemeinsame Zinn- und Antimonfraktion gemessen werden.

Die Analyse der γ -Linien wurde auch hier entsprechend der in 2. 1. 6. 3. beschriebenen Methode vorgenommen. Lediglich die aus der Zerlegung erhaltene kürzerlebige Komponente mußte auf die Nachbildung aus dem Vorläufer Sn-132 korrigiert werden, da die 4.2 min Komponente nur aus der Spaltung entsteht [39].

Die berechneten Isomerenverhältnisse für $\text{U-235}(n_{\text{th}},f)$, $\text{Pu-239}(n_{\text{th}},f)$ und $\text{Cf-249}(n_{\text{th}},f)$ sind in den Tabellen 5 bis 7 zusammengefaßt.

Diskussion

Für $\text{U-235}(n_{\text{th}},f)$ liegen bisher zwei weitere Messungen des Isomerenverhältnisses vor. Das Ergebnis dieser Arbeit von 0.44 ± 0.05 stimmt innerhalb der Fehlergrenzen mit dem Ergebnis von Rudolph [40] von 0.38 ± 0.04 überein. Daneben können auch Ergebnisse einer Arbeitsgruppe am Institut Laue Langevin in Grenoble [41, 42] zum Vergleich herangezogen werden. Das Ergebnis in [41] mit dem Verhältnis des 8^- -Zustandes zum 4^+ -Spinzustand von 0.4 ± 0.2 zeigt gute Übereinstimmung.

In [42] ist der Wert von 0.4 ± 0.2 für das Verhältnis Sb^f/Sb^m angegeben, was, wie aus dem Zusammenhang hervorgeht, dem Verhältnis $\text{Sb}(4^+)/\text{Sb}(8^-)$ entspricht. Dies ist der reziproke Wert unseres Ergebnisses. Da das in [41] angegebene Resultat aber unserem Wert entspricht, folgern wir, daß in [42] ein Schreibfehler vorliegt.

Es sollte hier auch davor gewarnt werden, die Bezeichnung von m und f als Charakterisierung des isomeren bzw. Grundzustandes (état metastable bzw. état fondamental) aufzufassen, da bisher nach meiner Kenntnis noch kein expe-

Tabelle 5: Isomerenverhältnis $^{132}\text{Sb}(8^-)/^{132}\text{Sb}(4^+)$
bei U-235(n_{th}, f)

ausgewählte γ -Energie (keV)	Versuchsnr.	$\text{Sb}^{8^-}/\text{Sb}^{4^+}$
696.8	1	0.46
973.9	1	0.54
696.8	2	0.42
973.9	2	0.43
696.8	3	0.44
973.9	3	0.40
696.8	4	0.37
973.9	4	0.44
Mittelwert aus allen Versuchen und Energien gemittelt		0.44 ± 0.05

Tabelle 6: Isomerenverhältnis $^{132}\text{Sb}(8^-)/^{132}\text{Sb}(4^+)$
bei $\text{Pu-239}(n_{\text{th}}, f)$

ausgewählte γ -Energie (keV)	Versuchsnr.	$\text{Sb}^{8^-}/\text{Sb}^{4^+}$
696.8	1	0.34
973.9	1	0.33
696.8	2	0.31
973.9	2	0.33
Mittelwert		0.33 ± 0.01

Tabelle 7: Isomerenverhältnis $^{132}\text{Sb}(8^-)/^{132}\text{Sb}(4^+)$
bei Cf-249(n_{th}, f)

ausgewählte γ -Energie (keV)	Versuchsnr.	$\text{Sb}^8 / \text{Sb}^{4+}$
696.8	1	0.51
973.9	1	0.57
696.8	2	0.42
973.9	2	0.50
696.8	3	0.44
973.9	3	0.40
696.8	4	0.46
973.9	4	0.42
696.8	5	0.48
973.9	5	0.47
696.8	6	0.48
973.9	6	0.47
696.8	7	0.49
973.9	7	0.46
696.8	8	0.45
973.9	8	0.47
Mittelwert		0.47 ± 0.05

rimenteller Hinweis dafür vorliegt, welcher der beiden Zustände den Grund- und welcher den angeregten Zustand darstellt.

Eigene Messungen, die am Massenseparator 'Lohengrin' bei der mittleren Rückstoßenergie der Fragmente der Kette-132 (78 MeV) und einer Ionenladung von 23^+ durchgeführt wurden, liefern ein Isomerenverhältnis von $Sb(8^-)/Sb(4^+) = 0.41 \pm 0.12$.

Auf diese Ergebnisse wird später näher eingegangen (Kap. 3).

Für die Spaltung von $Pu-239(n_{th}, f)$ und $Cf-249(n_{th}, f)$ liegen bisher keine Vergleichswerte vor.

2. 2. 2. Fraktionale Ausbeuten von Sn-132 (f_c), Sb-132 und Te-132 (beide f_1) bei Pu-239(n_{th}, f)

In Erweiterung der Arbeit von Naeumann et al. [24] wurden die in Kapitel 2. 1. beschriebenen Trennmethoden angewendet, um die Ladungsverteilung der Kette-132 bei der Spaltung von Pu-239 mit thermischen Neutronen radiochemisch zu untersuchen.

Die Spaltprodukte des Zinn, Antimon und Tellur verteilen sich nach der schnellen Trennung, wie in den folgenden Gleichungen beschrieben auf die einzelnen Fraktionen

Fraktion A (Natriumborhydridverfahren: Te-rückhaltefalle, Reaktionsgefäß und Sicherheitsfalle;
Zink/Salzsäure-Verfahren : Reaktionsgefäß und Sicherheitsfalle)

$$A = f_{A, Sn} \cdot Te_{Sn} + f_{A, Sb} \cdot Te_{Sb} + f_{A, Te} \cdot Te_{Te} \quad (9a)$$

Fraktion B (Natriumborhydridverfahren: KOH/EtOH-Falle;
Zink/Salzsäureverfahren : Te-rückhaltefall)

$$B = f_{B, Sn} \cdot Te_{Sn} + f_{B, Sb} \cdot Te_{Sb} + f_{B, Te} \cdot Te_{Te} \quad (9b)$$

Fraktion C (Natriumborhydridverfahren: Silbernitratfall
Zink/Salzsäure-Verfahren : Silbernitratfall)

$$C = f_{C, Sn} \cdot Te_{Sn} + f_{C, Sb} \cdot Te_{Sb} + f_{C, Te} \cdot Te_{Te} \quad (9c)$$

Es bedeuten:

A, B, C die in den Fraktionen A (B oder C) gemessene Aktivität Jod-132

$f_{X, Y}$ die über die langlebigen Indikatoren (Sn-113, Sb-124, Te-127) bestimmten chemischen Trennausbeuten in den Fraktionen X (X=A, B, C) und der Nuklide Y (Y=Sn, Sb, Te)

Te_Y die dem Nuklid Y entsprechende Tellur-132 Aktivität, die über die im Gleichgewicht stehende Jod-132-Aktivität gemessen wird.

Durch Umwandlung der Gleichungen 9a bis 9c werden die Te_Y erhalten, mit denen man die fraktionalen Ausbeuten berechnen kann.

$$\begin{aligned} \delta = & f_{A,Sn} \cdot f_{B,Sb} \cdot f_{C,Te} + f_{A,Sb} \cdot f_{B,Te} \cdot f_{C,Sn} + \\ & + f_{A,Te} \cdot f_{B,Sn} \cdot f_{C,Sb} - f_{A,Te} \cdot f_{B,Sb} \cdot f_{C,Sn} - \\ & - f_{A,Sb} \cdot f_{B,Sn} \cdot f_{C,Te} - f_{A,Sn} \cdot f_{B,Te} \cdot f_{C,Sb} \end{aligned} \quad (10)$$

$$\begin{aligned} Te_{Sn} = & 1/\delta \cdot [A \cdot f_{B,Sb} \cdot f_{C,Te} + B \cdot f_{A,Te} \cdot f_{C,Sb} + \\ & + C \cdot f_{B,Te} \cdot f_{A,Sb} - A \cdot f_{B,Te} \cdot f_{C,Sb} - \\ & - B \cdot f_{A,Sb} \cdot f_{C,Te} - C \cdot f_{A,Te} \cdot f_{B,Sb}] \end{aligned} \quad (11a)$$

$$\begin{aligned} Te_{Sb} = & 1/\delta \cdot [A \cdot f_{B,Te} \cdot f_{C,Sn} + B \cdot f_{A,Sn} \cdot f_{C,Te} + \\ & + C \cdot f_{A,Te} \cdot f_{B,Sn} - A \cdot f_{B,Sn} \cdot f_{C,Te} - \\ & - B \cdot f_{A,Te} \cdot f_{C,Sn} - C \cdot f_{A,Sn} \cdot f_{B,Te}] \end{aligned} \quad (11b)$$

$$\begin{aligned} Te_{Te} = & 1/\delta \cdot [A \cdot f_{B,Sn} \cdot f_{C,Sb} + B \cdot f_{A,Sb} \cdot f_{C,Sn} + \\ & + C \cdot f_{A,Sn} \cdot f_{B,Sb} - A \cdot f_{B,Sb} \cdot f_{C,Sn} - \\ & - B \cdot f_{A,Sn} \cdot f_{C,Sb} - C \cdot f_{A,Sb} \cdot f_{B,Sn}] \end{aligned} \quad (11c)$$

Die vorstehenden Gleichungen 10 bis 11c vereinfachen sich wesentlich, je nach der angewandten Trennmethode. Bei der Trennung nach dem Natriumborhydridverfahren findet sich in den Fraktionen B und C kein Tellur mehr, und in Fraktion C tritt kein Antimon mehr auf. Beim Zink/Salzsäureverfahren ist die chemische Trennausbeute für Zinn in den Fraktionen B und C gleich Null, während Tellur in Fraktion C nicht mehr vorkommt.

Tab. 8: Experimentelle Ergebnisse zur Bestimmung der Ladungsverteilung in der Kette-132 bei Pu-239 (n_{th}, f)

VSN	VAR	chemische Trennausbeuten in (%) von:										Korrigierte Zählrate J-132 in Fraktion:		
		Zinn in Fraktion			Antimon in Fraktion			Tellur in Fraktion						
		$f_{A,Sn}$	$f_{B,Sn}$	$f_{C,Sn}$	$f_{A,Sb}$	$f_{B,Sb}$	$f_{C,Sb}$	$f_{A,Te}$	$f_{B,Te}$	$f_{C,Te}$				
		A	B	C										
1	1	44.4	46.9	10.3	51.8	47.2	1.0	99.7	0.3	-	35333	14378	548	
2	1	58.7	33.5	8.3	46.7	53.1	-	100	-	-	25573	5412	148	
3	1	70.0	22.7	5.8	52.6	46.8	0.5	99.6	0.4	-	23805	5421	145	
4	1	74.5	23.3	2.2	44.8	55.2	-	100	-	-	60235	19273	407	
5	1	88.9	10.3	8.2	56.8	42.9	0.3	98.3	1.7	-	91459	24998	640	
6	2	100	-	-	97.4	0.4	2.2	98.4	1.6	-	60263	496	620	
7	2	99.6	0.4	-	91.1	0.7	8.2	95.4	4.6	-	68986	1667	3176	
8	2	100	-	-	49.7	0.3	50.0	91.2	8.8	-	11578	588	3813	

Variante 1: $NaBH_4$ -Verfahren

Variante 2: Zn/HCl-Verfahren

Aus den Gleichungen 11a bis c kann die Spaltproduktaktivität der gesamten Kette durch Addition der Te_Y erhalten werden (Gleichung 12):

$$Sum = Te_{Sn} + Te_{Sb} + Te_{Te} \quad (12)$$

Hierbei muß außerdem noch berücksichtigt werden, daß die fraktionale kumulierte Ausbeute des Tellur-132 nicht genau 1 ist. Ein Anteil von $F_J = 0.02$ für J-132 [43, 44] muß bei der Berechnung der fraktionalen Ausbeuten berücksichtigt werden. In Gleichung 13 ist diese Korrektur vorgesehen:

$$F_Y = (Te_Y / Sum) \cdot (1 - F_J) \quad (13)$$

(F_Y stellt hierbei die fraktionale kumulierte Zinn(F_{Sn}), die fraktional unabhängige Antimon(F_{Sb}) die fraktional unabhängige Tellur(F_{Te}) Ausbeute dar).

Bei der Auswertung der fraktionalen Ausbeuten der Nuklide der Kette-132 nach dieser Methode werden beide Antimonisomeren gemeinsam erfaßt, da sie nach ihrem β^- -Zerfall über das Gleichgewicht Te-132/J-132 vermessen werden.

Die Meßergebnisse sind in Tabelle 8 zusammengestellt.

Neben der Bestimmung der Ausbeuten der Kettenglieder mit $A=132$ über das extrahierte J-132 wurde das bereits beschriebene direkte Verfahren (Kap. 2. 1. 3. 3.) angewendet. Dieses γ -spektroskopische Verfahren ist im Gegensatz zu den vorhergehenden Varianten in der Lage, bei Kenntnis der Zerfallseigenschaften der Kettenglieder (s. Anhang) auch die Verteilung der Isomeren zu bestimmen.

Als charakteristische γ -Linien des Zinn-132 wurden die Linien bei 246.7 keV und 340.2 keV und für Antimon bei 696.8 keV und 973.9 keV ausgewertet.

Der Abfall der γ -Linien beider Nuklide wurde über mehrere Halbwertszeiten verfolgt und die Anfangsaktivitäten, wie in Kapitel 2. 1. 6. 2. beschrieben, ermittelt. Die Resultate wurden in das Verhältnis der Ausbeuten von Sn-132 und Sb-132 umgerechnet.

Bestimmung von Sn-132

Die gemessene Aktivität des Zinn-132 sei I_{Sn} , die Linienanalyse liefert die Aktivität zum Ende der Bestrahlung. I_{Sn}^0 stellt somit die in Tabelle 9 aufgeführten korrigierten Zinnaktivitäten zum Ende der Bestrahlung dar. Als Anfangsaktivität erhält man nach Korrektur für die Nachweiswahrscheinlichkeit des Detektors (ϵ) und die relative auf Sb-132 bezogene Linienintensität [39, 79] (H):

$$A_{Sn}^0 = I_{Sn}^0 / (\epsilon \cdot H) \quad (14)$$

Durch Mittelwertbildung der aus den beiden ausgewerteten γ -Linien erhaltenen Anfangsaktivitäten und Korrektur mit der chemischen Trennausbeute f_{Sn} , läßt sich die Anzahl der gebildeten Atome Zinn-132 ermitteln:

$$N_{Sn} = 1/2 \cdot (A_{Sn,247}^0 + A_{Sn,340}^0) \cdot (f_{Sn} \cdot \lambda_{Sn})^{-1} \quad (15)$$

Bestimmung von Sb-132

Zur Bestimmung von Antimon-132 werden die beiden isomeren Zustände (8^- und 4^+) über die charakteristischen γ -Linien bei 696.8 und 973.9 keV ausgewertet. Die gemessene Aktivität zum Bestrahlungsende stellt jedoch vorerst nur einen kumulierten Antimonwert dar, der noch bezüglich der Neubildung des 4^+ -Zustandes aus dem Zinn-132 korrigiert werden muß. Die Korrektur wird gemäß Gleichung 16 und 17 berücksichtigt

$$I_{Sb}^{sec} = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} \cdot I_{Sn}^o \cdot [\exp(-\lambda_1 \cdot t) - \exp(-\lambda_2 \cdot t)] \quad (16)$$

$$I_{Sb}(t) = I_{Sb,mess}(t) - I_{Sb}^{sec}(t) \cdot \frac{\epsilon_{Sb}^Y \cdot H_{Sb}^Y}{\epsilon_{Sn}^Y \cdot H_{Sn}^Y} \quad (17)$$

I_{Sb}^{sec}	sekundär gebildetes Antimon
I_{Sn}	Meßrate des aus Zinn-132 entstandenen Antimon-132 (Index o: zum Bestrahlungsende)
$I_{Sb}(t)$	Zählrate des Antimon-132 zur Zeit t (unabhängig gebildet)
$I_{Sb,mess}$	gemessene Zählrate Sb-132 (kumuliertes Antimon zur Zeit t)
$\lambda_{1,2}$	Zerfallskonstanten von Sn-132 (1) und Sb-132 (2)
$\epsilon_{Sn,Sb}^Y$	Nachweiswahrscheinlichkeit des Ge(Li)-Detektors bei der betreffenden γ -Linie
$H_{Sn,Sb}^Y$	Linienintensität der betreffenden γ -Linie

Ähnlich den Gleichungen 14 und 15 werden anschließend die gebildeten Atome Antimon-132 ermittelt.

Die Berechnung der fraktionalen Ausbeuten erfolgt unter Verwendung des über die Extraktion des J-132 bestimmten Tellur-132-Wertes und der aus den Systematiken [43, 44] entnommenen Korrektur für J-132.

Die fraktionalen Ausbeuten, die aus dem Verhältnis der gemessenen Zinn- und Antimonatome berechnet werden, lassen sich mit Gleichung 18 bestimmen:

$$F_x = N_x / (N_{Sn} + N_{Sb}) \cdot (1 - F_{Te} - F_J) \quad (18)$$

F fraktionale Ausbeuten

N Anzahl der Atome

Indices x = Sn, Sb

Tabelle 9 gibt die entsprechend den Gleichungen 16 und 17 berechneten Anfangsaktivitäten von Zinn (I_{Sn}^{O}) und unabhängig gebildetes Antimon (I_{Sb}^{O}) wieder.

Die Ergebnisse der Ladungsverteilung, die fraktionalen Ausbeuten, sind in Tab. 10 zusammengestellt. Als fraktionale Ausbeuten wurden bei dieser Variante für Tellur-132

$F_{\text{Te}} = 0.396$ und für Jod-132 der oben bereits verwendete Wert von $F_{\text{J}} = 0.02$ eingesetzt.

Tabelle 9: Experimentelle Ergebnisse der Bestimmung der Ladungsverteilung in der Kette-132 bei Pu-239(n_{th}, f) mit der direkten γ -spektroskopischen Meßmethode

VSN	Chemische Ausbeute (%)		Zählrate I^0 (Imp/s)	
	Zinn	Antimon	Zinn	Antimon
1	27.7	26.3	370	483
2	39.0	40.6	370	537
3	38.4	38.5	1150	1573
4	35.0	29.4	740	898
5	15.4	25.6	455	920
6	10.3	40.7	300	1267

Tabelle 10: Zusammenfassung der fraktionalen Ausbeuten der Nuklide der Kette-132 bei der Spaltung von Pu-239 mit thermischen Neutronen

VSN	VAR	fraktionale Ausbeuten (%)		
		Zinn	Antimon	Tellur
1	1	9.9	48.7	39.2
2	1	8.1	52.8	40.1
3	1	9.9	45.6	40.9
4 [†]	1	22.3	33.3	42.2
5	1	5.9	55.1	40.1
6	2	11.3	49.4	37.1
7	2	6.9	51.3	39.6
8	2	12.0	46.7	39.1
9	3	7.9	51.9	-
10	3	8.7	51.1	-
11	3	8.8	51.0	-
12	3	10.3	49.4	-
13	3	8.4	51.4	-
14	3	8.8	51.0	-
Mittelwert:		9.0 [±] 1.7	50.4 [±] 2.5	39.6 [±] 1.2

[†]Dieser Wert wurde, da er aus der normalen Systematik der Werte stark herausfällt, bei der Berechnung des Mittelwertes vernachlässigt.

Variante 1: NaBH₄-Verfahren

Variante 2: Zn/HCl-Verfahren

Variante 3: direktes γ-spektrometrisches Verfahren

2. 2. 3. Ausbeuten der Nuklide Sn-131, Sb-133 und Sb-134 bei Pu-239(n_{th}, f)

Die Ausbeuten der Nuklide Sn-131 (cu), Sb-133 (cu) und des 10.3 s Isomeren des Sb-134 (cu) wurden relativ zu U-235(n_{th}, f) bestimmt.

Bei der Auftrennung des Spaltproduktgemisches mit der Hydridverflüchtigung können, wie oben in Kap. 2. 1. 3. 3. gezeigt, die aus der Spaltung gebildeten Zinn- und Antimonisotope isoliert und γ -spektrometrisch gemessen werden.

Zur Bestimmung der relativen Aktivitäten von Sn-131, Sb-133 und Sb-134 wurde der Abfall der wichtigsten γ -Linien verfolgt und die relativen Aktivitäten auf das Ende der Bestrahlung zurückgerechnet.

Zinn-131 wurde über seine γ -Linie bei 448 keV ($T_{1/2}=59$ s) [45, 46] bestimmt.

Für Sb-133 lagen in der Literatur zwei verschiedene Halbwertszeiten von 2.1 min [47, 48] und 2.67 min [49] vor. Eigene Messungen ergaben für die γ -Linie bei 1096 keV eine Halbwertszeit von 2.4 ± 0.3 min.

Für Antimon-134 wurde nur das Isomere mit 10.3 s Halbwertszeit untersucht. Die ausgewertete γ -Linie lag bei 297 keV [38].

Die Ausbeuten ließen sich, wie bereits in [50] gezeigt, nach Gleichung 19 berechnen:

$$Y_x^{Pu} = \frac{A_x^{Pu} \cdot A_{Ref}^U \cdot IN_{Ref}^{Pu}}{A_{Ref}^{Pu} \cdot A_x^U \cdot IN_{Ref}^U} \cdot Y_x^U \quad (19)$$

wobei:

Y	Ausbeute des untersuchten Nuklides x
A	relative Aktivität
IN	unabhängigige Ausbeute des Referenznuklides

oberer Index : Spaltmaterial U-235, Pu-239

unterer Index : Nuklid: x=Sn-131, Sb-133, Sb-134

Ref. Bezugsnuklid

bedeuten.

Die Werte der bekannten unabhängigen Ausbeuten (IN) wurden der Ausbeutensammlung [11] entnommen.

Die Meßwerte und die berechneten Ausbeuten sind in Tabelle 11 zusammengestellt.

Mittels der [51] entnommenen Kettenausbeuten bei Pu-239 können aus den ermittelten Ausbeutewerten die fraktionalen Ausbeuten der Nuklide bestimmt werden.

Diese Werte sind ebenfalls in Tabelle 11 aufgeführt.

Als Bezugsnuklid wurde bei beiden Spaltungsreaktionen Sb-132 ausgewertet. Der Abfall der γ -Linien bei 696.8 keV und 973.9 keV mit der Mischhalbwertszeit für beide Isomere von 3.1 bzw. 3.2 min wurde verfolgt und die Aktivität bestimmt. Die unabhängigen Ausbeuten wurden, wie auch der Zusammenstellung in Tabelle 11 zu entnehmen ist, der Arbeit [24] für $U-235(n_{th},f)$ und dieser Arbeit für $Pu-239(n_{th},f)$ entnommen.

Tab. 11: Experimentelle Ergebnisse, Literaturwerte und Resultate der Bestimmung der Ausbeuten von Sn-131, Sb-133 und Sb-134 bei Pu-239 (n_{th}, f)

Isotop	Uran-235 (n_{th}, f)			Plutonium-239 (n_{th}, f)	
	rel. Aktivität (Imp/s)	Y(%)	Ref.	rel. Aktivität (Imp/s)	Y(%)
Sb-132 (IN)	194.8 $\pm$ 13.3	2.0 $\pm$ 0.07	24,51	198.1 $\pm$ 6.8	2.6 $\pm$ 0.16
Sn-131 (CU)	282.5 $\pm$ 16.8	0.97 $\pm$ 0.03	11,51	102.9 $\pm$ 7.7	0.45 $\pm$ 0.07
Sn-132 (CU)	364.4 $\pm$ 33.4	0.56 $\pm$ 0.04	24,51	222.0 $\pm$ 59.9	0.44 $\pm$ 0.23
Sb-133 (CU)	106.2 $\pm$ 2.6	1.7 $\pm$ 0.1	11,51	51.9 $\pm$ 20.6	1.06 $\pm$ 0.39
Sb-134 (CU)	1658.5 $\pm$ 18.8	0.38 $\pm$ 0.06	40,51	957.6 $\pm$ 83.5	0.28 $\pm$ 0.10

Tab. 12: Experimentelle Ergebnisse, Literaturwerte und Resultate der Bestimmung der Ausbeuten bei Cf-249 (n_{th}, f)

Isotop	Uran-235 (n_{th}, f)		Ref.	Californium-249 (n_{th}, f)		Ref.
	rel. Aktivität (Imp/s)	Y (%)		rel. Aktivität (Imp/s)	Y (%)	
Ba-139	89045 $\pm$ 11344	6.5 $\pm$ 0.12	51	19299 $\pm$ 2190	5.68 $\pm$ 0.16	52
Ba-141	2257493 $\pm$ 62195	5.82 $\pm$ 0.06	51	439844 $\pm$ 21112	6.34 $\pm$ 0.38	53
Sn-132 (CU)	364.4 $\pm$ 32.7	0.56 $\pm$ 0.04	24,51	16.5 $\pm$ 3.7	0.14 $\pm$ 0.06	diese Arbeit
Sb-132 (IN)	196.9 $\pm$ 13.3	2.00 $\pm$ 0.07	24,51	28.6 $\pm$ 8.3	1.62 $\pm$ 0.29	diese Arbeit
Sb-133 (CU)	106.2 $\pm$ 2.6	1.70 $\pm$ 0.1	11,51	20.1 $\pm$ 7.2	1.79 $\pm$ 0.41	diese Arbeit
Sb-134 (CU)	1658.5 $\pm$ 18.8	0.38 $\pm$ 0.06	11,51	331.4 $\pm$ 56.6	0.31 $\pm$ 0.18	diese Arbeit

2. 2. 4. Bestimmung der Ausbeuten von Sn-132, Sb-132, Sb-133 und Sb-134 bei der Spaltung von Cf-249 mit thermischen Neutronen

Die Ausbeuten der Zinn- und Antimonisotope wurden relativ zur Spaltung von U-235 bestimmt. Diese bereits oben in 2. 2. 3. angewendete Methode der direkten Bestimmung dieser Nuklide über ihre γ -Spektren liefert die Zählraten der einzelnen Kerne.

Da bei Cf-249(n_{th}, f) keine Ausbeuten der mitabgetrennten Isotope bekannt war, konnte die relative Zahl der Spaltungen durch einen internen 'Monitor' nicht bestimmt werden.

Die Berechnung der Ausbeuten erfolgte nach Gleichung 19a, die Gleichung 19 bis auf die Bezeichnung des Spaltmaterials Cf gleicht, wobei als Referenznuclid mitabgetrenntes Ba-139 bzw. Ba-141 diente (siehe dazu Kapitel 2. 1. 4.).

$$Y_x^{Cf} = \frac{A_x^{Cf} \cdot A_{Ref}^U \cdot CU_{Ref}^{Cf}}{A_{Ref}^{Cf} \cdot A_x^U \cdot CU_{Ref}^U} \cdot Y_x^U \quad (19a)$$

CU_{Ref} berücksichtigt die unterschiedlichen kumulierten Ausbeuten der Bariumisotope.

Die erhaltenen Meßwerte, Literaturwerte sowie die Ergebnisse der Ausbeutebestimmung finden sich in Tabelle 12.

2. 2. 5. Diskussion der Ergebnisse

Die Kette-132

In Abbildung 7 sind die fraktionalen Ausbeuten der Nuklide der Kette-132 als Funktion der Kernladung aufgetragen. Zur Darstellung wurde die Auftragung im Wahrscheinlichkeitsnetz gewählt, da hier gleichzeitig unabhängige und kumulierte Ausbeuten wiedergegeben werden können.

Aus dieser Abbildung können die für die Verteilung charakteristischen Größen Z_p und σ abgelesen werden. Sie sind zusammen mit den aus ihnen ableitbaren Werten der Ladungsverschiebung in Tabelle 13 zusammengefaßt.

Der von Troutner et al. [26] gemessene Wert für die kumulierte Tellurausbeute von 76 % wurde mit in Abbildung 7 eingezeichnet und liegt ebenfalls auf der Geraden mit der Steigung $\sigma=0.6$ durch die kumulierten Ausbeuten. Die Abweichungen der Einzelwerte von der Ausgleichsgeraden können durch gerade-ungerade Einflüsse erklärt werden.

Das Resultat der Ladungsverteilungsmessung bei Pu-239(n_{th}) stimmt mit den Ergebnissen von Gunther et al. [25] nicht überein. Der Vergleich der beiden Messungen zeigt eine ähnliche Diskrepanz, wie sie einleitend bei U-235 gezeigt wurde (siehe auch Tabelle 1).

Der Unterschied, der sich aus den mit den Ergebnissen dieser Arbeit und aus [25] berechneten mittleren Kernladungen, Z_p , ergibt, liegt bei mehr als 1.3 Ladungseinheiten.

Um die Ursache dieser Diskrepanz aufzuzeigen, müssen kurz die experimentellen Bedingungen der Untersuchungen von Gunther et al. [25] beleuchtet werden.

Die Messungen wurden an einem Rückstoßspektrometer des 'Herzog-Mattauch'-Typs in Garching ausgeführt.

Die Spaltprodukte verlassen, wie auch an dem später zu beschreibenden Massenseparator 'Lohengrin', mit fast ihrer gesamten kinetischen Rückstoßenergie das Target.

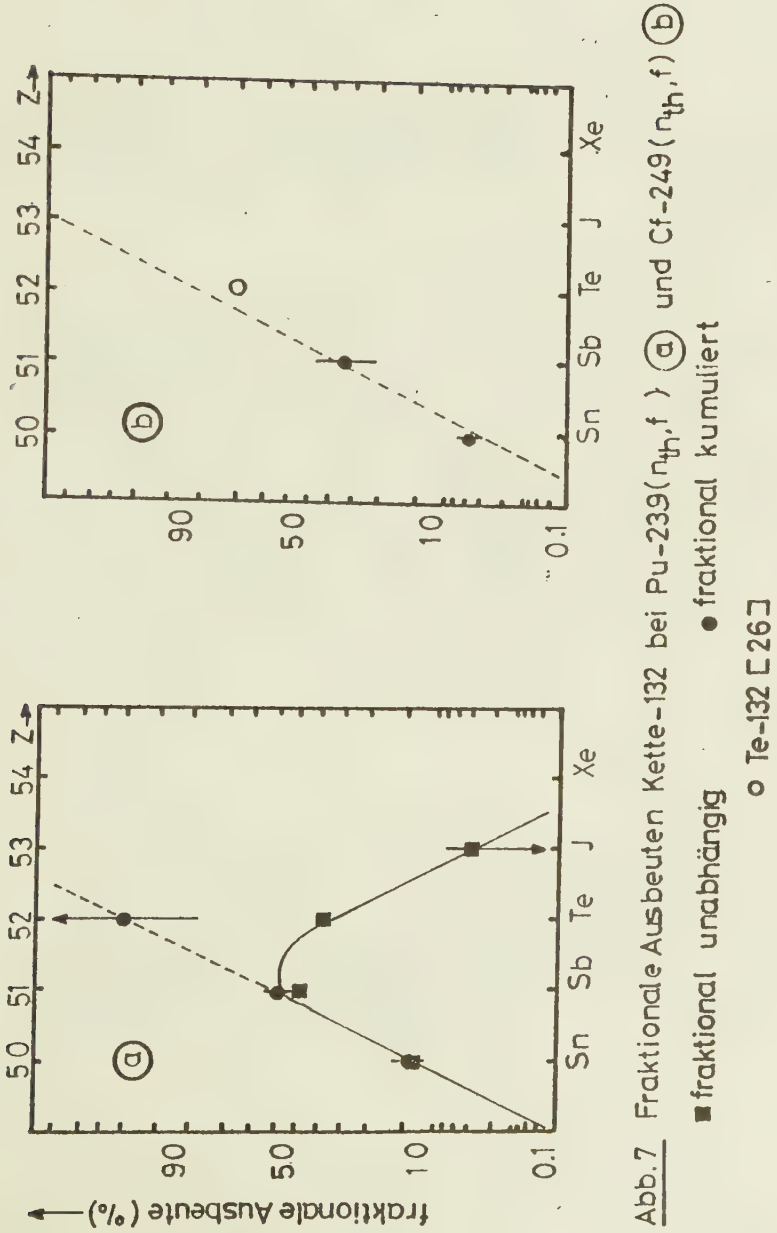


Abb.7 Fraktionale Ausbeuten Kette-132 bei Pu-239(η_{th}, f) (a) und Cf-249(η_{th}, f) (b)

Tab.13: Charakteristische Größen für die Ladungsverteilung in der Kette-132 bei Pu-239 ($n_{th,f}$) und Cf-249 ($n_{th,f}$)

	Pu-239 ($n_{th,f}$)	Cf-249 ($n_{th,f}$)
Z_p	51.3 ± 0.05	51.7 ± 0.1
σ_{exp}	0.59 ± 0.1	0.7 ± 0.1
Z_{UCD}	51.89	52.11
Z	-0.59 ± 0.05	-0.41 ± 0.1

und besitzen einen Ionenladungszustand von 18^+ - 28^+ . Die Fragmente werden nach Massenlinien entsprechend ihren A/Q-Werten aufgetrennt. Sie werden nach einer Flugzeit von ca. 1 μ s auf Photoplatten gesammelt.

Nach einer Wartezeit, bis alle kurzlebigen Kerne infolge β^- -Zerfalls sich umgewandelt haben, werden diese Kernspur-emulsionen entwickelt. Die Zahl der von dem Endpunkt einer Spaltproduktspur ausgehenden β^- -Zerfallsspuren wird unter dem Mikroskop bestimmt und das Primärprodukt aus der Anzahl dieser Spuren ermittelt.

Bei der Untersuchung der Spaltung von Pu-239 war der Separator auf eine Energie, die über der mittleren Energie der Kette lag, eingestellt.

Produkte, die durch Emission prompter Neutronen entstanden sind, werden deshalb teilweise nicht erfaßt. Diese Tatsache würde sich darin äußern, daß wie in [6, 24] für U-235(n_{th} ,f) detailliert diskutiert wird, bevorzugt primäre Spaltprodukte gezählt werden.

Da Sn-133 nur eine Ausbeute von 0.43 % (f_c) [43] und Sn-134 von 0.03 % (f_c) [43] besitzen, dagegen aber Sb-133 17.5 % und Sb-134 3.8 % [diese Arbeit] (beide f_c), würde dies für Sb-132 eine höhere kumulierte Ausbeute ergeben.

Radiochemische Messungen, wie sie in dieser Arbeit durchgeführt wurden und auch bei U-235 eine ähnliche Diskrepanz zu den physikalischen Messungen zeigen, mitteln über den gesamten Energiebereich und alle Ladungszustände.

Diese Messungen erscheinen zuverlässig, da drei verschiedene Varianten zu denselben Ergebnissen führen und Kontaminationen wegen der γ -spektrometrischen Auswertung klein gehalten werden können.

Nachbarnuklide und Ladungsverschiebung

Bei den Spaltungsreaktionen von Pu-239(n_{th}, f) und Cf-249(n_{th}, f) wurden außer den Nukliden der Kette-132 noch die Ausbeuten von Sn-131 (nur Pu-239), Sb-133 und Sb-135 bestimmt. Die Ausbeute von Sn-131 bei der Spaltung von Cf-249 konnte aus Gründen der Statistik nicht berechnet werden.

Aus den gemessenen unabhängigen und kumulierten Ausbeuten wurden mit Hilfe der Massenausbeuten [51, 52, 53] die fraktionalen Ausbeuten und daraus die Z_p -Werte ermittelt. Die wahrscheinlichste Kernladung Z_p wurde unter Annahme einer Gauß'schen Normalverteilung mit $\sigma=0.56$ bestimmt.

Die Z_{UCD} -Werte für Pu-239(n_{th}, f) wurden mit den Wahl'schen Angaben [3] für die mittlere Zahl pro Kette emittierter Neutronen berechnet. Für Cf-249(n_{th}, f) liegen nur ungenau vermessene Massenausbeuten [52, 53], die sich teilweise stark unterscheiden, vor. Diese Schwierigkeit kann aus Abbildung 8 gesehen werden, wo die Massenausbeutekurven dieser beiden Arbeiten übereinander aufgetragen sind. Die Zahl der pro Masse emittierten Neutronen wurde mit der Näherung (Gleichung 20) aus dem Vergleich zur Spaltung von U-235 abgeschätzt. Die Werte für U-235(n_{th}, f) wurden [3] entnommen.

$$v_{Cf}^x = \frac{\bar{v}_{Cf}}{\bar{v}_U} \cdot v_U^x \quad (20)$$

v_s^x Anzahl emittierter prompter Neutronen bei
 $\Lambda=x$ und Spaltmaterial $s=\underline{U-235}, \underline{Cf-249}$

$\bar{v}_s$ mittlere Anzahl der bei dem entsprechenden
 Spaltmaterial emittierten Neutronen,

Die mittlere Anzahl prompter Neutronen wurde [3] und [54] entnommen. Die eingesetzten Werte betragen:

$$\bar{v}_U = 2.43 [3], \quad \bar{v}_{Cf} = 4.6 [54]$$

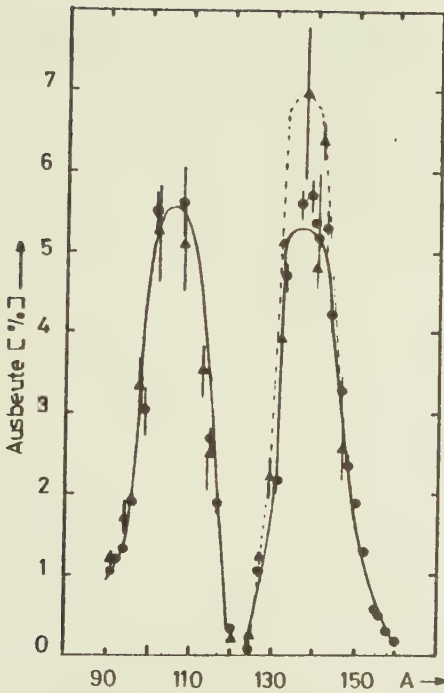


Abb. 8 Massenausbeutekurven für Cf-249 (n_{th}, f)

● [52]

▲ [53]

Tab. 14: Zusammenfassung der Ausbeuten in den Ketten 131 bis 134 bei Pu-239 ($n_{th,f}$) und Cf-249 ($n_{th,f}$)

Nuklid	Y_{Pu-239}	Y_{Cf-249}
Sn-131	0.45 ± 0.07	-
Sn-132	0.44 ± 0.23	0.14 ± 0.06
Sb-132	2.60 ± 0.16	1.62 ± 0.29
Sb-133	1.19 ± 0.39	1.79 ± 0.41
Sb-134	0.28 ± 0.10	0.31 ± 0.18

Tabelle 15 Zusammenfassung der berechneten wahrscheinlichsten Kernladungen und der Ladungsverschiebung für die Ketten 131-134 bei Pu-239(n_{th}, f)

Nuklid	Z_p -Wert	ΔZ
Sn-131	$51.2^{+0.1}$	$0.3^{+0.1}$
Sb-133	$52.0^{+0.15}$	$0.35^{+0.15}$
Sb-134	$52.6^{+0.2}$	$0.22^{+0.2}$

In Tabelle 14 sind die Ergebnisse für beide Spaltungsreaktionen zusammengefaßt.

Die kumulierte Ausbeute des 10.3 s Isomeren des Antimon-134 kann mit den Resultaten von Rudolph [55] verglichen werden.

Der in dieser Arbeit bestimmte Wert für die kumulierte Ausbeute dieses Nuklids von 0.28 ± 0.1 stimmt innerhalb der Fehlergrenzen mit dem mit Hilfe von [51] umgerechneten Ausbeutewert von Rudolph von 0.24 ± 0.05 überein.

Die Resultate der anderen Nuklide können nur indirekt mit Literaturwerten verglichen werden. Es zeigt sich, daß die in dieser Arbeit gemessenen Werte, mit [51] in fraktionale Ausbeuten umgerechnet und mit Hilfe einer Gauß'schen Normalverteilung ($\sigma=0.56$) bestimmten Z_p und ΔZ -Werte, mit den Ergebnissen anderer Arbeiten gut übereinstimmen, wie in Tabelle 15 gezeigt.

Die Ladungsverschiebung als Funktion der Fragmentmasse ist in Abb. 9 aufgetragen. Die aus den Resultaten dieser Arbeit bestimmten Ladungsverschiebungen sind besonders hervorgehoben (▲).

Verglichen mit der Ladungsverschiebung von U-235 ($n_{th,f}$), in Abbildung 1 dargestellt, zeigt sich eine Analogie. Der Einfluß der abgeschlossenen 50-Protonenschale macht sich bei beiden Spaltungsreaktionen gleichermaßen bemerkbar. Leider beeinträchtigen die nur relativ spärlichen Ausbeutewerte für die Spaltung von Cf-249 mit thermischen Neutronen (siehe Tab. 16) und die sehr ungenauen Massenausbeuten eine Auftragung und Interpretation der Ladungsverschiebungskurve bei der Spaltung von Cf-249 ($n_{th,f}$). Die aus den wenigen Daten resultierende Kurve ist in Abb. 10 dargestellt. Qualitativ zeigt sich aber für schwere Fragmente ein ΔZ negativen Vorzeichens und von der Größenordnung $- 0.5 \pm 0.5$.

Besonders interessant wäre es wohl, nunmehr auch bei

Cf-249 (n_{th}, f) Ausbeuten bei Massen > 130 zu messen, um feststellen zu können, Ob das bei Pu-239 und U-235 gefundene Abknicken der Ladungsverteilungskurve entlang $Z=50$ auch bei diesem sehr viel schwereren Spaltmaterial auftritt.

Aus der Tatsache der Ähnlichkeit der Ladungsverschiebung im Bereich um die Masse 132 bei U-235 (n_{th}, f), U-233 (n_{th}, f), Pu-239 (n_{th}, f) und Cf-249 (n_{th}, f) kann man schließen, daß das Abknicken der Z -Kurve auf die 50-Protonenschale zurückzuführen ist, und nicht durch leichte Fragmente bewirkt wird, die bei U-235 und Pu-239 zu Zinn-132 komplementär sind, bei der Spaltung von Cf-249 mit thermischen Neutronen aber zu A=142 komplementär sein müßten.

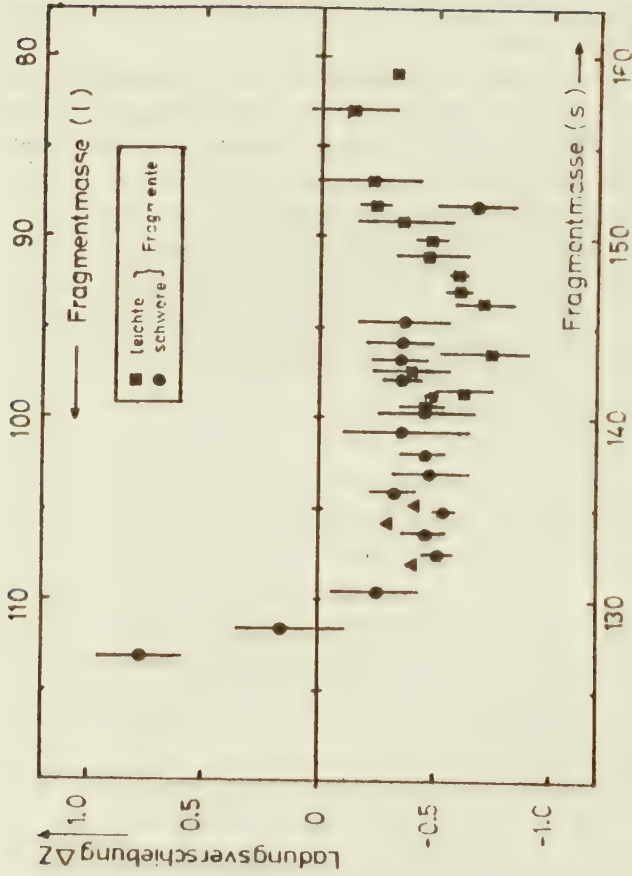


Abb. 2: Darstellung der Ladungsverschiebung bei der Spaltung von Pu-239 mit thermischen Neutronen ($\blacktriangle$ Werte aus dieser Arbeit)

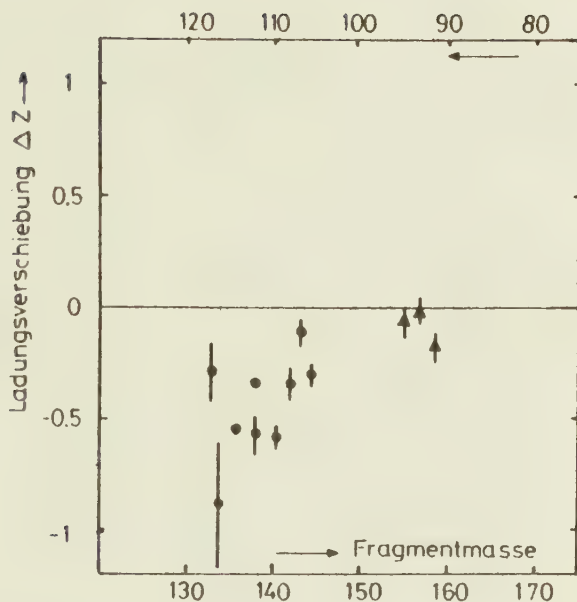


Abb. 10: Ladungsverschiebung bei der
von Cf-249 mit thermischen
Neutronen

Tab. 16: Zusammenfassung der bisher vorliegenden
fraktionalen Ausbeuten bei Cf-249 ($n_{th,f}$)

Nuklid	Y(%)	Ref.
Kr-89 (fc)	77.58 $\pm$ 1.6	76
Kr-91 (fc)	32.0 $\pm$ 3.1	76
Kr-92 (fc)	9.5 $\pm$ 1.3	76
Sn-132(fc)	2.7	diese Arbeit
Sb-132(fi)	31.2	diese Arbeit
Te-132(fc)	76 $\pm$ 2	26
Sb-133(fc)	35.1	diese Arbeit
Sb-134(fc)	5	diese Arbeit
Te-134(fc)	29 $\pm$ 6	26
Xe-136(fc)	94.5 $\pm$ 1	26
Cs-136(fi)	5.5 $\pm$ 1.1	53
Xe-139(fc)	32 $\pm$ 5	76
Ba-140(fc)	96.5 $\pm$ 0.1	77
Xe-141(fc)	4.03 $\pm$ 0.3	76
Xe-142(fc)	1.16 $\pm$ 0.3	76

3. Ladungsverteilung in der Kette-132 als Funktion der Rückstoßenergie und der Ionenladung der Spaltprodukte bei U-235($n_{th,f}$)

Radiochemische und physikalische Messungen der Ladungsverteilung in der Kette-132 zeigen bei U-235($n_{th,f}$) [24, 27] und Pu-239($n_{th,f}$) [diese Arbeit, 25] stark unterschiedliche Ergebnisse.

Diese Diskrepanzen kommen in der unterschiedlichen Ausbeute des doppelt magischen Nuklids $^{132}_{50}\text{Sn}^{82}$ zum Ausdruck. Während radiochemische Messungen für das Zinn eine fraktionale kumulierte Ausbeute von 13.7% [24] (U-235) und 9.0% (Pu-239) [diese Arbeit] finden, liegen die Werte der physikalischen Untersuchungen bei über 80%. Entsprechend weichen die berechneten Ladungsverschiebungen ΔZ bei beiden Spaltungsreaktionen um ca. 1.2 Ladungseinheiten voneinander ab, was eine Folge des zu niedriger Kernladung hin verschobenen Z_p -Wertes bei den physikalischen Messungen ist.

Die Untersuchung dieser verschiedenen Werte ist für die Beschreibung des Ablaufs der Kernspaltung von entscheidender Bedeutung, da die physikalischen Ergebnisse übereinstimmend auf einen großen Einfluß der abgeschlossenen Nukleonenschalen auf die Ladungsverteilung hinweist und direkt in theoretische Betrachtungen des Spaltvorganges eingeflossen ist [56]. Diese theoretischen Berechnungen deuten an, daß die asymmetrische Spaltung fast ausschließlich auf den Einfluß der magischen Schalen bei Zinn-132 zurückzuführen ist.

Zur Klärung der experimentellen Diskrepanz in der Ladungsverteilung der Kette-132 müssen die Arbeitsmethoden der physikalischen und chemischen Untersuchungen verglichen werden.

Denschlag [6] zerlegte die in [57] angegebene Energieverteilung der fraktionalen Ausbeuten in eine primäre und eine sekundäre Komponente. Hierbei werden als primäre

Fragmente diejenigen Spaltfragmente verstanden, die vor der Emission der prompten Neutronen vorliegen.

Beide Fragmentverteilungen unterscheiden sich in der mittleren Energie. Primäre Spaltbruchstücke liegen um ca. 2-4 MeV höher als sekundäre.

Dies würde bedeuten, vergleicht man mit den Versuchsbedingungen von Konecny [27] und Gunther [25], daß die physikalischen Trennungen vorwiegend auf den primären Bereich beschränkt sind.

Die Ladungsverteilung würde zum Zinn ($Z=50$) verschoben sein, da dieses Nuklid bevorzugt primär entstehen sollte und auch nur wenig aus dem Zerfall der neutronenreicheren Isotope Sn-133 und Sn-134 gespeist werden sollte.

Eine andere Möglichkeit diese unterschiedlichen Resultate zu erklären, wäre das Auftreten eines kurzlebigen isomeren Zustandes beim Zinn-132, das wegen innerer Konversion auf den Photoplaten eine Spaltspur hinterließe und somit einen β^- -Zerfall vortäuschen würde.

Konecny selbst versuchte diesen Einfluß zu überprüfen indem er mit Hilfe der 4π - β -Messung die Zerfallskettenlänge in A=132 als Funktion der Totzeit der Meßelektronik untersuchte. Seine Messungen schlossen einen derartigen isomeren Zustand bis zu Lebensdauern im Bereich von ms aus.

Als weitere Fehlermöglichkeit könnten Kontaminationen auftreten, wenn Nachbarketten mit gleichem A/Q-Wert nicht ausgeschlossen werden können.

Weiterhin könnten Einflüsse des Ladungszustandes mit dem die Fragmente das Target verlassen eine bedeutende Rolle spielen [58].

Die Untersuchung der Ladungsverteilung in der Kette-132 als Funktion der Rückstoßenergie und des Ladungszustandes mit einem γ -spektrometrischen Verfahren vermag möglich Verunreinigungen von anderen Nukliden auszuschließen und würde auch nicht durch einen möglichen isomeren Übergang zum Grundzustand gestört werden.

Diese Art von Messungen wurden durchgeführt. Zuerst wurde das Verhältnis der Ausbeuten von Sn-132 zu Sb-132 als Funktion der Reichweite der Fragmente bestimmt. Als der Massenseparator 'Lohengrin' in Grenoble zur Verfügung stand wurden diese Messungen als Funktion der Rückstoßenergie und Ionenladung begonnen. Diese Experimente sind von der Trennmethode den experimentellen Bedingungen der Untersuchungen von Konecny und Gunther [25, 27] ähnlich und können auch, da sie in Abhängigkeit von der Rückstoßenergie durchgeführt wurden, Auskünfte über die primäre Ladungsverteilung geben.

Die beiden Teile der Arbeit, die Vorversuche über die Reichweite der Fragmente und die massenseparatorischen Messungen werden im folgenden nacheinander beschrieben.

3. 1. Verhältnis der fraktionalen Ausbeuten von Zinn zu Antimon als Funktion der Reichweite der Spaltfragmente der Kette-132 bei $U-235(n_{th}, f)$

Vor der Inbetriebnahme des Massenseparators 'Lohengrin' in Grenoble (siehe dazu Kap. 3. 2.) standen zur Ermittlung der Ladungsverteilung der Kette-132 als Funktion der Rückstoßenergie der Spaltfragmente nur die Hilfsmittel des Chemikers zur Verfügung.

Die Auswahl unterschiedlicher Energien der Fragmente wurde mit Hilfe ihrer Reichweite vorgenommen, wie einleiten (Kap. 1) angedeutet und in [28] beschrieben.

Experimentelles

Durch Vakuumaufdampfung [28] bzw. elektrolytische Abscheidung [59, 60] von Uran-235 (90 % angereichert auf einem Aluminiumblech hergestellte Targets wurden in Polypropylenbestrahlungskapseln (Volumen ca. 1.2 ml, Durchmesser 9 mm) fixiert und mit einer wechselnden Anzahl Absorberfolien (Mylar bzw. Polypropylen) bedeckt.

Die Spaltprodukte, deren Rückstoßenergie groß genug war, um die Absorberfolien zu durchdringen, wurden in einer Fängerlösung * aufgefangen.

Nach Bestrahlungsende wurde die Probe direkt aus dem Reaktor in die Trennapparatur (Abbildung 5) geschossen und entleert (Kap. 2. 1. 2.).

Die Zinn- und Antimonisotope wurden, wie in Kapitel 2. 1. 2. 2. beschrieben, mittels $NaBH_4$ als Hydride abgetrennt, gemeinsam absorbiert und γ -spektrometrisch über

*

Zusammensetzung der Fängerlösung: 10 μCi Sn-113, 10 μCi Sb-124 Indikator, sowie ca. 10 μg Sr^{2+} und

ihre charakteristischen γ -Linien (Sn-132: 247 keV und 340 keV; Sb-132: 696.8 keV und 973.9 keV)* nachgewiesen und bestimmt.

*

wegen der schlechten Statistik bei hohen Folienstärken konnten die beiden untersuchten γ -Linien des Sb-132 nicht nach den beiden Isomeren analysiert werden.

Auswertung

Bei der notwendigerweise recht hohen Targetdicke (Tabelle 17) und einer Unsicherheit in der chemischen Zusammensetzung des Targetmaterials (U, UO_2 , $\text{U}_3\text{O}_8 \cdot x\text{H}_2\text{O}$) und der Gleichmäßigkeit der Abscheidung war es schwierig, ausreichend genau effektive Absorberdicken zu definieren.

Als eine Möglichkeit, die erhaltenen Daten auszuwerten, bot sich der Vergleich des Verhältnisses Sn-132/Sb-132 mit der Rückstoßausbeute (Tab. 17) an.

Die Rückstoßausbeute stellt ein Maß für die effektive Absorberdicke in und über der Uranschicht dar.

Sie ist definiert als der Anteil an Sn-132 (bzw. Sb-132), der in die Fängerlösung gelangt, bezogen auf die Gesamtmenge des im Target erzeugten Sn-132 (Sb-132).

Die Gesamtmenge wurde aus dem Vergleich mit einer U-235-Lösung erhalten, die unter sonst gleichen Versuchsbedingungen bestrahlt wurde.

Die Daten sind in Abbildung 11 aufgetragen und können dort mit zwei Kurven verglichen werden, die auf Grund der von Northcliffe und Schilling [61] gegebenen Energie-Reichweite-Beziehung berechnet sind, für den Fall, daß die mittlere kinetische Rückstoßenergie der Zinn-132-Spaltfragmente eine um 2 MeV höhere Anfangsenergie besitzt als Sb-132 * und für den Fall, daß die Rückstoßenergien gleich sind.

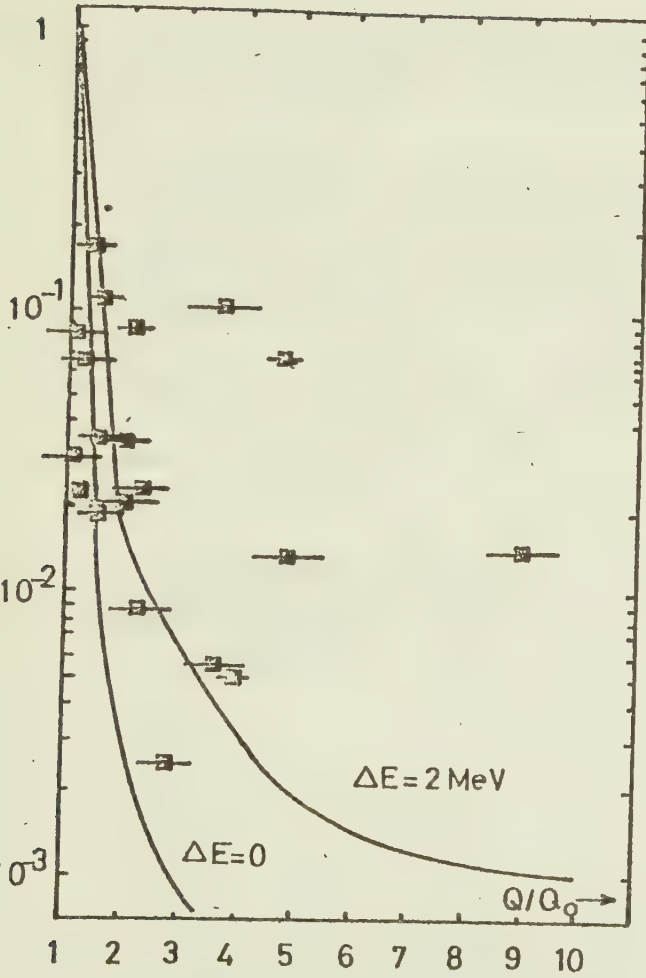
* Die Tatsache, daß auch die Kurve für $\Delta E=0$, d.h. gleiche Anfangsenergie von Sn und Sb eine Krümmung zu höheren Werten Q/Q_0 aufweist, beruht auf der stärkeren Wechselwirkung von Sb ($Z=51$) im Verhältnis zu Sn ($Z=50$) mit Materie. Auf eine Beschreibung der Berechnung der beiden Linien soll hier verzichtet werden, da die Ergebnisse dieser Voruntersuchungen inzwischen mit besserer Genauigkeit am Massenseparator Lohengrin nachvollzogen wurden. Die Rechnungen berücksichtigen die

Tab. 17 : Zusammenfassung der experimentellen Ergebnisse zur Bestimmung der Ladungsverteilung in der Kette-132 als Funktion der Reichweite der Spaltprodukte

Versuchsnr.	Target- dicke [mg/cm ²]	Absorber- dicke [mg/cm ²]	chemische Ausbeute		Zählrate		Verhältnis (Sn/Sb)/ (Sn/Sb) _o	Rückstoß- ausbeute
			Sn [%]	Sb [%]	Sn Imp/15s	Sb Imp/15s		
1	2.93	1.050	23.4	28.5	30472	5760	2.19±0.32	8 · 10 ⁻²
2	2.43	1.575	35.0	44.3	5099	443	4.76±0.26	7.8 · 10 ⁻²
3	2.28	1.575	28.8	28.1	5580	254	9.70±0.74	1.6 · 10 ⁻²
4	2.26	1.575	25.1	30.3	5712	477	4.95±0.61	1.9 · 10 ⁻²
5	2.90	1.575	50.0	68.0	2168	301	2.98±0.70	2.1 · 10 ⁻²
6	3.22	0.714	32.2	62.2	4486	523	3.55±0.54	5.8 · 10 ⁻²
7	2.96	0.952	5.2	4.0	42864	27382	0.65±0.61	1.25 · 10 ⁻²
8	2.66	1.190	9.3	14.9	72626	31434	0.95±0.80	0.193
9	3.27	1.190	8.4	9.9	60601	17212	1.45±0.39	0.135
10	3.00	1.190	59.6	66.1	14555	3061	1.96±0.39	0.035
11	3.24	1.575	64.0	32.7	1205	810	0.62±0.90	7.5 · 10 ⁻³
12	3.65	1.575	23.2	36.6	5263	660	3.69±0.61	0.123
13	0.34	1.020	11.0	14.1	33529	8804	1.57±0.31	0.0363
14	0.576	1.020	15.5	16.4	33616	12179	1.14±0.33	0.0219
15	0.506	1.020	14.5	7.5	44319	29061	0.63±0.64	0.0328
16	0.532	1.020	62.0	62.7	3428	1801	0.79±0.38	0.0024

Fortsetzung Tabelle 17:

Versuchsnr.	Target- dicke [mg/cm ²]	Absorber- dicke [mg/cm ²]	chemische Ausbeute		Zählrate		Verhältnis (Sn/Sb)/ (Sn/Sb) ₀	Rückstoß- ausbeute
			Sn [%]	Sb [%]	Sn Imp/15s	Sb Imp/15s		
17	0.532	1.020	44.0	39.0	25639	6504	1.63+0.32	0.0180
18	0.234	1.020	61.2	50.0	20075	7927	1.05+0.53	0.0390
19	0.329	1.020	49.2	37.0	71138	28088	1.05+0.44	0.0813
20	0.329	1.020	52.5	53.2	92517	24168	1.58+0.32	0.1054
21	0.432	1.020	9.5	13.3	78195	24758	1.31+0.45	0.0678
22	0.506	2.040	23.2	28.6	1495	412	1.50+0.31	0.0011
23	0.473	2.040	30.5	36.4	893	153	2.41+0.33	0.71 10 ⁻³
24	0.473	2.040	19.1	25.0	605	123	2.03+0.43	0.48 10 ⁻³
25	0.532	2.040	27.8	34.0	1018	177	2.38+0.73	0.72 10 ⁻³
26	0.243	2.040	10.0	7.6	3124	327	3.95+0.27	0.48 10 ⁻³
27	0.328	2.040	8.7	9.0	6833	1219	2.32+0.48	0.78 10 ⁻³
28	0.432	2.040	10.1	15.5	953	121	3.26+0.33	0.85 10 ⁻³
29	0.329	2.040	26.4	23.2	2252	330	2.82+0.35	0.26 10 ⁻²



Verhältnis der Ausbeuten $^{132}\text{Sn} / ^{132}\text{Sb}$
als Funktion der Rückstoßausbeute

Es zeigt sich, daß die Quotienten eher der Kurve mit dem Energieunterschied 2 MeV folgen. Dies würde bedeuten, daß Sn-132 tatsächlich eine höhere Rückstoßenergie als Sb-132 besitzt.

Allerdings zeigt sich schon aus der Streuung der einzelnen Meßwerte, daß das Verfahren recht ungenau ist. Der Grund liegt darin, daß entweder der erwartete Effekt klein ist, oder im Bereich niederer Rückstoßausbeuten, d.h. großer Absorberdicken, die gemessenen Zählraten sehr klein werden.

Eine Erhöhung der Zählraten durch längere Bestrahlungszeiten bzw. größere Targetflächen war wegen der Kurzlebigkeit der untersuchten Isotope bzw. des begrenzten Rohrdurchmessers der Rohrpost am TRIGA-Reaktor in Mainz nicht möglich.

Die Experimente wurden deshalb abgeschlossen, als sich am Massenseparator 'Lohengrin' die Möglichkeit bot, mit erheblich größerer Genauigkeit zu arbeiten.

Energiedispersion der Fragmente bei $A=132$, die aus [57] abgeleitet wurden, die Energie-Reichweite-Beziehung von Northcliffe und Schilling [61] und die Target-Absorbergeometrie. Eine Aufweitung der Energiedispersion der Fragmente durch Kernstöße am Ende des Abbremsweges der Fragmente wurde bei der Berechnung außer Betracht gelassen.

3. 2. Untersuchung der Energie- und Ladungsabhängigkeit der fraktionalen Ausbeuten in der Kette-132 bei $U-235(n_{th}, f)$ am Massenseparator 'Lohengrin' in Grenoble

Der Massenseparator 'Lohengrin' ist am Hochflußreaktor des deutsch-französisch-britischen Instituts 'Laue-Langevin' aufgebaut.

Da er Spaltprodukte nach Masse, Energie und Ionenladung auftrennen kann, bietet er gute Bedingungen die Ladungsverteilung in Abhängigkeit von der Rückstoßenergie der Fragmente und ihrer Ionenladung zu untersuchen.

Prinzip der Messungen

Ein dünnes U-235-Target ($40\mu\text{g}/\text{cm}^2$ bzw. $400\mu\text{g}/\text{cm}^2$) wird am Hochflußreaktor in Grenoble (Leistung ca. 57 MW, Neutronenfluß $5 \cdot 10^{14} \text{ n}/\text{cm}^2\text{s}$) mit thermischen Neutronen bestrahlt.

Die Spaltprodukte verlassen das Target mit fast ihrer gesamten kinetischen Rückstoßenergie. Der Transport der Spaltprodukte durch den Separator dauert ca. 1-2 μs . Danach treten die nach Masse, Ladung und Energie getrennten Nuklide durch ein Fenster, das mit zwei Mylarfolien überklebt ist, aus dem Separator aus und werden auf einem am Austrittsspalt des Separators vorbeigeführten Endlossbandsystem aufgesammelt. Die auf diesem Band implantierten Spaltprodukte können kontinuierlich bzw. diskontinuierlich vom Spalt in die Meßposition befördert werden. Die abgetrennten Produkte wurden γ -spektrometrisch gemessen.

Um die Nachweiswahrscheinlichkeit vor dem Ge(Li)-Detektor zu erhöhen, wurde das Band in einem 'Zick-Zack'-Mechanismus vor dem Detektor gefaltet.

Die Steuerung des Separators, der Meßelektronik und die Sammlung der gemessenen Daten geschieht über das System 'Nicole'. Die gemessenen γ -Spektren werden über dieses System auf Computerband gespeichert und können daran an-

schließlich ausgewertet werden.

Ein in der Mitte des Austrittsfensters befestigter stationärer Streifen wurde als 'Monitor' für die gesamte Kette verwendet. Dieser Sammelstreifen wurde direkt γ -spektrometrisch gemessen bzw. chemisch auf Te-132 aufgearbeitet und mit einem β -Antikoinzidenzzähler oder einem NaJ(Tl) -Bohrlochkristall gemessen.

Die fraktionalen Ausbeuten der einzelnen Kettenglieder errechnen sich dann aus dem Verhältnis der Sammelrate (Aktivität) der einzelnen Kettenglieder auf dem Transportband zu der Sammelrate (Aktivität) aller Kettenglieder auf dem Monitorstreifen.

Experimenteller Teil

3. 2. 1. Massenseparator Lohengrin

Der Massenseparator Lohengrin für unabgebremste Spaltprodukte ist eine Modifikation des klassischen Kauffmann-Thomson Parabelspektrographen [62 - 66].

Allgemein kann man sagen, daß der Separator, wie in Abbildung 12 dargestellt ein waagrechtes Magnetfeld und ein senkrecht dazu stehendes zylindrisches elektrisches Feld besitzt.

Die Spaltprodukte verlassen das Target mit fast ihrer gesamten Energie ($E=50-100$ MeV) und hoher Ionenladung ($Q=18^+$ bis 28^+) und werden entsprechend ihrem Verhältnis A/Q und ihrer Energie aufgetrennt.

Für die Gesamtlänge des Separators von 23 m beträgt die Flugzeit eines Fragments ca. 1-2 μ s. Die ionenoptischen Parameter, die in Tabelle 18 aufgeführt sind, können so gewählt werden, daß eine Massenauflösung $A/\Delta A=800$ und eine Energieauflösung $E/\Delta E=300$ resultiert (FWHM).

Am Ende des Separators treten die Spaltprodukte (einer Masse, Energie und Ionenladung) durch einen Spalt von 720 mm Länge und einer variablen Breite von 1-10 mm aus dem Separator aus. Der Austrittsspalt ist mit zwei Mylarfolien überspannt (innere Folie 3 μ m; äußere Folie 6 μ m) Die Auftrennung der Fragmente nach ihrer kinetischen Energie erfolgt entlang dem Schlitz, wobei einem Energieunterschied von 1 % eine Länge von 65.2 mm entspricht. In den hier beschriebenen Experimenten wurde nur eine Länge des Schlitzes von 200 mm ausgenutzt (siehe Abbildung 13) um die dadurch bedingte Energieunschärfe auf ± 1 MeV zu beschränken.

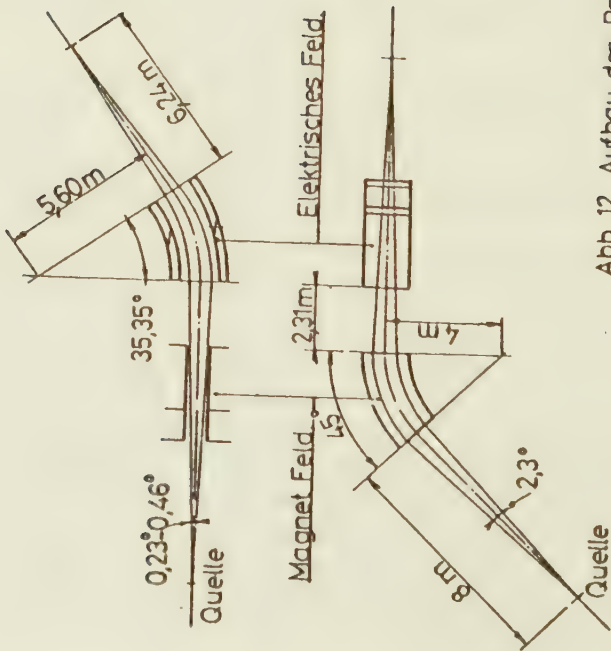
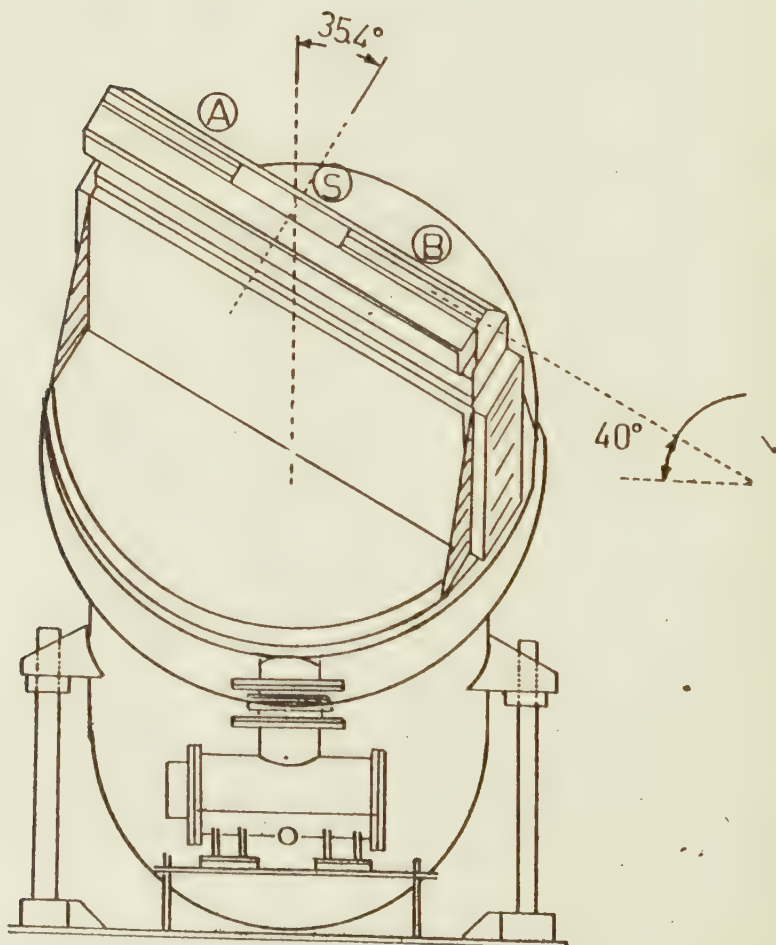


Abb.12 Aufbau des Parabelspektrographen
LOHENGRIN

Tabelle 18: Zusammenstellung einiger ionenoptischer
Daten für den Massenseparator Lohengrin

Abstand Quelle-Magnet	8 m
Ablenkungswinkel im Magnetfeld	45°
Abstand Magnet-elekt. Feld	2.31 m
Ablenkungswinkel im elektr. Feld	35.35°
Gesamtstrahllänge	23.1 m
Austrittsfenster	0.72 m
Massenauflösung für einen Massen- unterschied von 1%	3.24 cm
Energieauflösung für einen Ener- gieunterschied von 1%	6.52 cm

Abb. 13 Massenseparator LOHENGRIN
Austrittsfenster und Sammelzonen



Separatoreinstellung (elektrisches und magnetisches Feld)

Die Ablenkung und Trennung der Fragmente nach Masse, Energie und Ionenladung hängen von der Einstellung des elektrischen und magnetischen Feldes ab.

Die einzustellenden Felder für ein bestimmtes A/Q und eine Energie lassen sich aus den Gleichungen 21 und 22 berechnen:

$$U = C_1 \cdot E/Q \quad [\text{ kV }] \quad (21)$$

$$B = \sqrt{C_2 \cdot U \cdot A/Q} \quad [\text{ Gauß }] \quad (22)$$

Es bedeuten:

E	Fragmentenergie [MeV]
B	magnetisches Feld [Gauß]
A	Fragmentmasse [AMU]
Q	Ionenladung des Fragments
U	Ablenkspannung im elektrischen Feld [kV]
C_1 und C_2	experimentelle Apparatekonstanten

Die experimentellen Apparatekonstanten sind für jede Versuchsserie mit Hilfe bekannter Feldstärken neu zu bestimmen.

Charakteristische Werte für diese Versuchsserie waren:

$$C_1 = 108.76 \quad [\text{ kV/MeV }]$$

$$C_2 = 1196.8 \quad [\text{ Gauß}^2/\text{kV}]$$

3. 2. 2. Uran-235 Targets

Als Spaltquellen wurden verschieden dicke Uran-235 Targets verwendet. Die eingesetzten Quellen, deren Schichtdicken $40 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ und $400 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ betrugen, bestanden aus 93 % angereichertem Uran-235.

Die Targets waren durch Elektronenstrahlaufdampfung hergestellt, wobei ein dünnes Kupferblech bzw. eine dünne Titanfolie als 'Targetbacking' diente. Auf das dicke Target war eine Schutzschicht Tantal aufgezogen zur Verminderung mechanischer und chemischer Einflüsse auf das Targetmaterial, wie Oxidation oder Wasseraufnahme.

Die mittlere experimentelle Energie für die Kette-132 betrug direkt nach dem Einbau der Quelle beim dicken Target ca. 72 MeV und beim dünnen Target ($40 \mu\text{g}/\text{cm}^2$) lag der Wert bei 78 MeV.

Vergleicht man diese Ergebnisse mit der von Schmitt et al. [57] gemessenen Rückstoßenergie von Spaltfragmenten der Masse $A=132$ ($E=79.2 \text{ MeV}$), so ergibt sich ein Energieverlust der Fragmente im Target von 7 bis 8 MeV bzw. 1 bis 2 MeV.

Wegen der schärfer definierten Energie und der geringeren Breite der Energieverteilung beim dünnen Target wurde es hauptsächlich zur Messung der Energieabhängigkeit eingesetzt.

Mit dickeren Targets, die erheblich stärkere Messraten ergeben, wurden vor allem Messungen in Abhängigkeit von der Ionenladung durchgeführt.

In Abbildung 14 ist für ein dünnes Target gezeigt, wie sich seine Eigenschaften während des Betriebes ändern können. Man erkennt deutlich, daß sich auf das Target zwei verschiedene Einflüsse auswirken:

1. Mit wachsender Brenndauer nimmt die Intensität des Targets ab. Die Ursache davon scheint neben normalem Abbrand darin zu liegen, daß Uran-235 als Spaltmate-

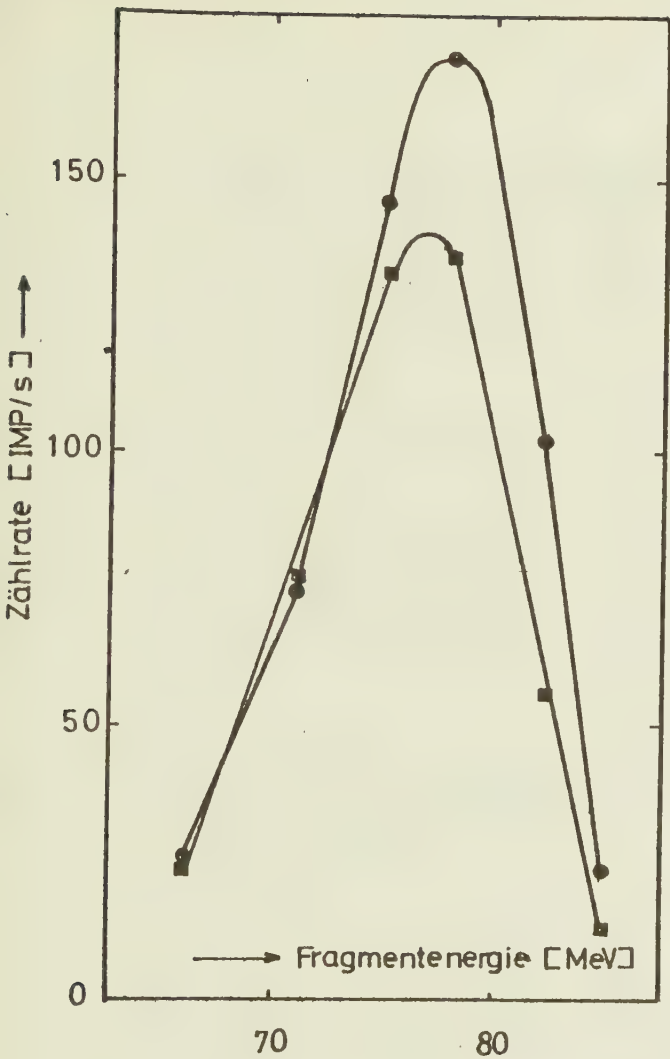


Abb. 14: Änderung der Eigenschaften eines dünnen Targets während des Betriebes

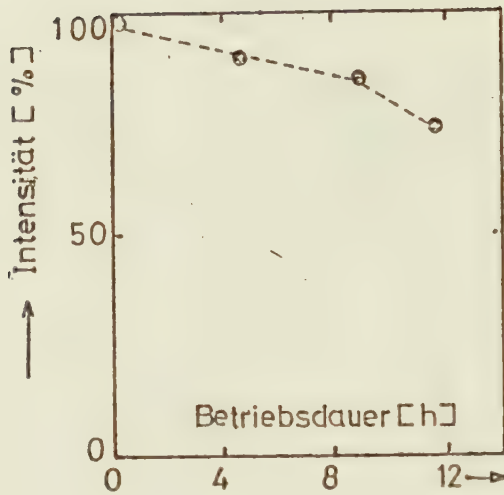


Abb. 15: Intensitätsverlust eines dünnen Targets während des Betriebes ($E = 78 \text{ MeV}$, $Q = 23^+$)

rial durch 'Sputtern' verlorengeht.

2. Verschiebung der mittleren experimentellen Energie der austretenden Fragmente, durch sich auf das Target aufsetzende Crackprodukte, die aus Pumpenölen stammen und durch Diffusion von Uran-235 in das Material des Targetträgers.

Im vorliegenden in Abbildung 14 gezeigten Fall wurde die Intensität der abgetrennten Spaltfragmente bei bestimmten Energien zu Beginn des Experimentes und während des Versuches mittels eines Oberflächensperrschichtdetektors, der pneumatisch in den Strahlengang eingefahren werden konnte, gemessen.

Die Ergebnisse zeigen sowohl eine Intensitätsminderung, als auch eine leichte Wanderung der mittleren Energie.

Der Intensitätsverlust in einem dünnen Target während einer Experimentserie ist in Abbildung 15 aufgetragen. Es zeigt sich eine Intensitätsminderung um fast 25 % bei einer Betriebsdauer von 12 Stunden.

3. 2. 3. Endlosbandsystem und 'Zick-Zack'-Mechanismus

Die aus der Austrittsöffnung des Massenseparators kommenden Spaltprodukte einer Masse wurden auf einem 12.5 mm breiten Computerband aufgesammelt und mittels eines Endlosbandsystems [67 - 70] in die Meßposition befördert.

Das Bandgerät wurde mit einem Schrittmotor, der über die 50 Hz Wechselstromfrequenz gesteuert wurde, angetrieben. Der Bandlauf führt von einem Sammelreservoir über mehrere Umlenkrollen an den Austrittspalt des Lohengrin und von dort über die Meßposition zurück in das Sammelreservoir (vgl. Abbildung 16). Dieses besitzt ein Aufnahmevermögen von 800 bis 1000 m Band und gewährleistet so, daß der größte Teil der langlebigen Aktivität bis zur Wiederverwendung abgeklungen ist.

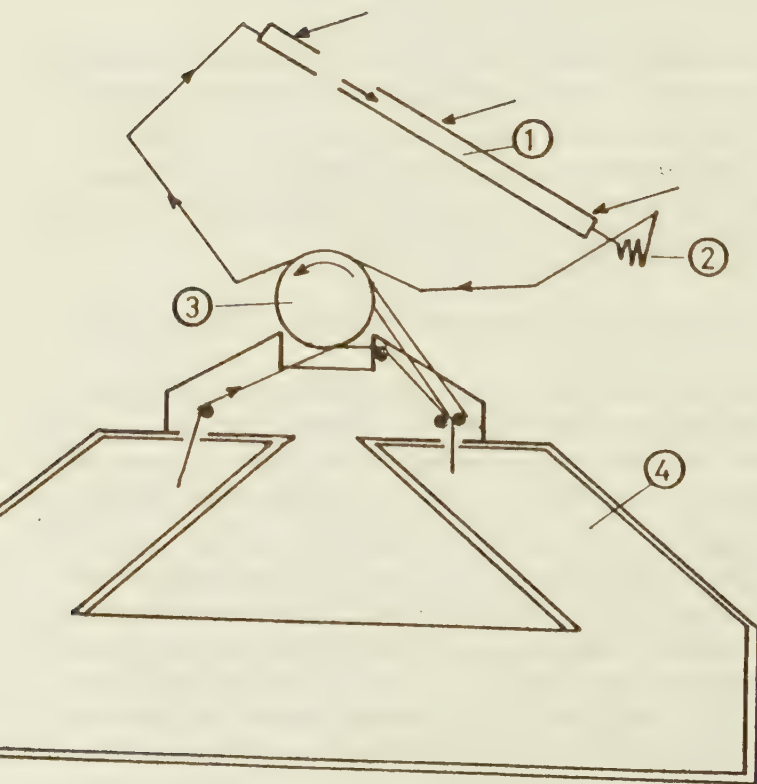
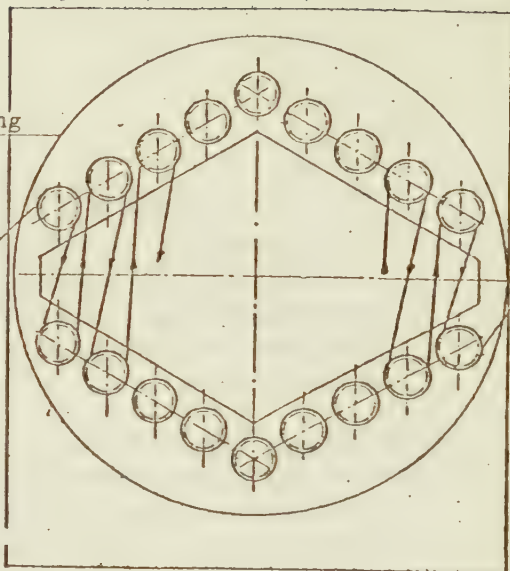
Abb. 16:

**Zick-Zack-Mechanismus
und Endlosbandgerät**

- 1 Separatorschlitz
- 2 Zick-Zack-M.
- 3 Bandantrieb
- 4 Sammelreservoir

Halterung

Band



Der Bandbetrieb kann prinzipiell diskontinuierlich, im 'Start-Stop'-Betrieb, oder kontinuierlich stattfinden. Bei kontinuierlichem Betrieb können Geschwindigkeiten von wenigen mm/s bis zu 1000 cm/s gefahren werden. Grenzen sind dabei nur durch die Mechanik des Systems gesetzt.

Um die Zählrate in der Meßposition zu erhöhen wurde das bestrahlte Band an einem 'Zick-Zack'-Mechanismus vor dem Detektor so gefaltet, daß 800 mm des Bandes gleichzeitig in der Meßposition waren und gemessen wurden. Zur Veranschaulichung ist das benutzte Bandsystem und der 'Zick-Zack'-Mechanismus in Abbildung 16 dargestellt.

3. 2. 4. Meß- und Steuerelektronik

System 'Nicole'

Das System 'Nicole', wie es in Abbildung 17 schematisch dargestellt ist, setzt sich aus der Kombination des Rechners TR86 (Telefunken) und der sog. Experimentierelektronik zusammen.

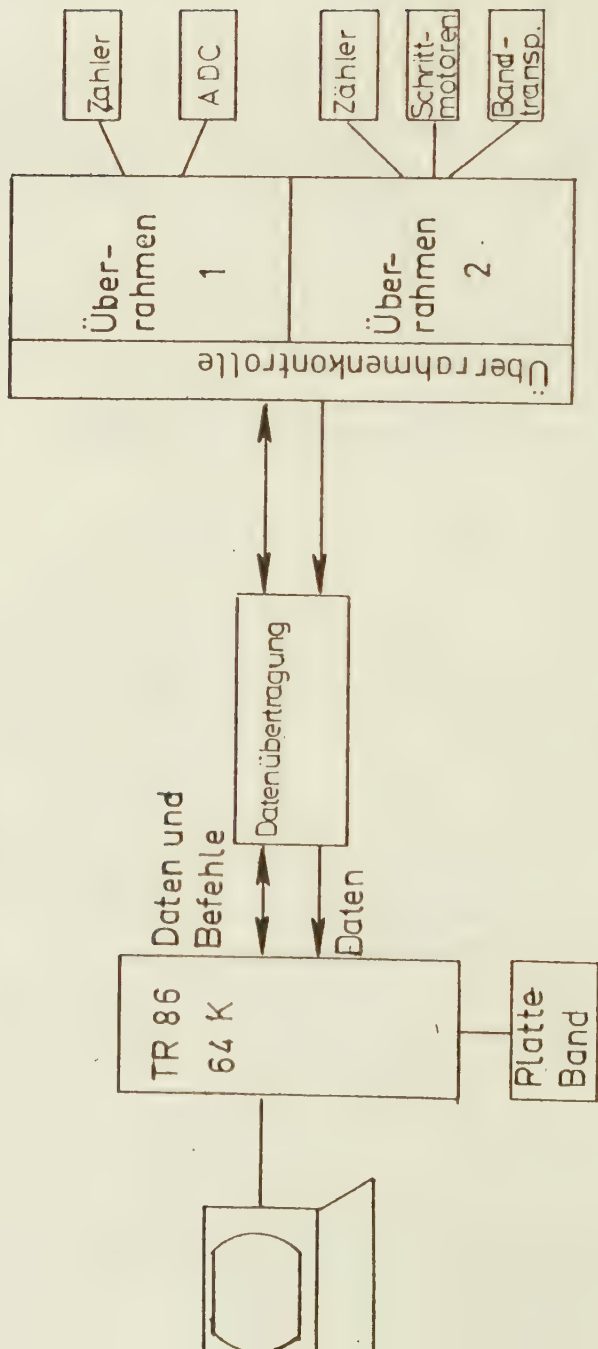
Mit Hilfe dieser Einrichtung kann im 'Timesharingbetrieb' die Steuerung und Bedienung des Massenseparators 'Lohengrin' und anderer am Hochflußreaktor aufgebauter Großexperimente und die Datenaufsammlung an den entsprechenden Arbeitsplätzen gleichzeitig geschehen.

Im vorliegenden Fall erfolgte die Steuerung des Separators von Hand, die Bedienung des Transportbandes und der Meßelektronik sowie die Datenaufsammlung durch das System Nicole.

Die Bedienung wird von einem Kontrollmonitor angesteuert. Befehle, die auf die Arbeit der einzelnen zusammengeschalteten Arbeitseinheiten bezogen sind, werden in Form von Parametersätzen an diesem 'Terminal' eingegeben.

Gleichzeitig, während der Befehlseingabe, kann am Kontrollbildschirm die im Kernspeicher stattfindende Datenaufsammlung verfolgt werden.

Abb. 17 System 'NICOLE'



Die Bearbeitung der Meßwerte kann endgültig nach dem Überspielen der gespeicherten Daten auf Magnetplatten an einer PDP 10 Rechenanlage erfolgen.

Die für die Experimente benötigten Parametersätze, sowie eine detaillierte Beschreibung des Systems Nicole sind in [71] zu finden.

Dem Benutzer des Sytem Nicole stehen zwei Arten von Parametersätzen zur Verfügung, die in den Programmbibliotheken 'BUS' und 'BEN' vom Terminal zugänglich sind. Die vom Benutzer zur Steuerung einzelner Betriebsfunktionen verwendeten Programme finden sich in 'BEN'. Programme der Bibliothek 'BEN' besitzen im Rechner eine niedrigere Priorität und verlangen einen höheren Zeitaufwand. Die Parametersätze, die zur Steuerung der Experimentierelektronik und Datenaufsammlung verwendet werden, können geändert, neugeschrieben und in 'BEN' abgespeichert werden. Die Änderung der Parametersätze eines Programmes wird vom Terminal ausgeführt.

Im wesentlichen wurden die Programmsätze 'MESS' und 'STOP', die Start und Ende einer Messung einleiten; 'TRAN' und 'STOT', die den Bandtransport steuern, verwendet.

In 'BUS' gespeicherte Parametersätze können vom Benutzer nicht geändert werden. Sie stellen 'BEN' übergeordnete Routinen dar.

3. 2. 5. Eichmessungen

Die Austrittsöffnung des Massenseparators wurde für die Experimente in 5 Zonen unterteilt (Abbildung 13). Die beiden Randzonen A und B (Breite je 260 mm) wurden mit Blindstücken verschlossen. Das Endlosband wurde an der mittleren 200 mm breiten Zone an einer Führungsschiene entlanggeführt. Die so entstandene mittlere Sammelzone wurde jedoch durch Einfügen des 25 mm breiten stationären Streifens zur Sammlung des Tellur nochmals getrennt.

In Abbildung 18 ist die Versuchsanordnung vor dem Austrittsspalt des Separators nochmals detailliert dargestellt.

Das Intensitätsprofil wurde vor dem gesamten 720 mm langen und 4 mm breiten Spalt untersucht. Hierzu wurde ein feststehender Sammelstreifen vor die Austrittsöffnung gelegt und längere Zeit mit der Masse 132 bestrahlt.

Nach Exposition des Bandes wurde der Streifen in 10 bzw. 20 mm breite Stücke zerschnitten. Diese Teilstücke wurden direkt in einem NaJ(Tl)-Bohrlochkristall gemessen oder aber in HClO_4 gelöst und nach Zugabe von Tellurträger (100 mg Te^{2+}) das Tellur elementar, nach Reduktion mit SnCl_2 abgetrennt.

Diese chemisch aufgearbeiteten Proben wurden in einem β^- -Antikoinzidenzzähler gemessen.

Zur Kontrolle der chemischen Reinheit der Tellurproben wurden mehrere Meßpunkte aufgenommen und der Abfall der Aktivität verfolgt.

Die gemessenen Aktivitäten wurden auf Bestrahlungsende und für chemische Trennausbeuten korrigiert. Da die Länge des Austrittspaltes (720 mm) nur einen Teil des natürlichen Energiebereiches der Spaltprodukte erfaßt, wurde die Messung bei verschiedenen sich teilweise überlappenden Energiebereichen durchgeführt.

In Abbildung 19 ist dieses Intensitätsprofil als Funktion der Bandposition bzw. der experimentellen Energie aufgetragen.

Man würde erwarten, daß in den Überlappungsbereichen der einzelnen Messungen identische Zählraten gefunden werden. Dies ist, wie aus der Abbildung erkenntlich, nicht der Fall. Außer der natürlichen Verteilung der Zahl der Fragmente mit $A=132$ als Funktion der Rückstoßenergie die über den gesamten Bereich der Abbildung geht, zeigt sich eine Abhängigkeit der Zählrate von der Position auf dem Austrittsschlitz, die darauf zurückzuführen ist, daß

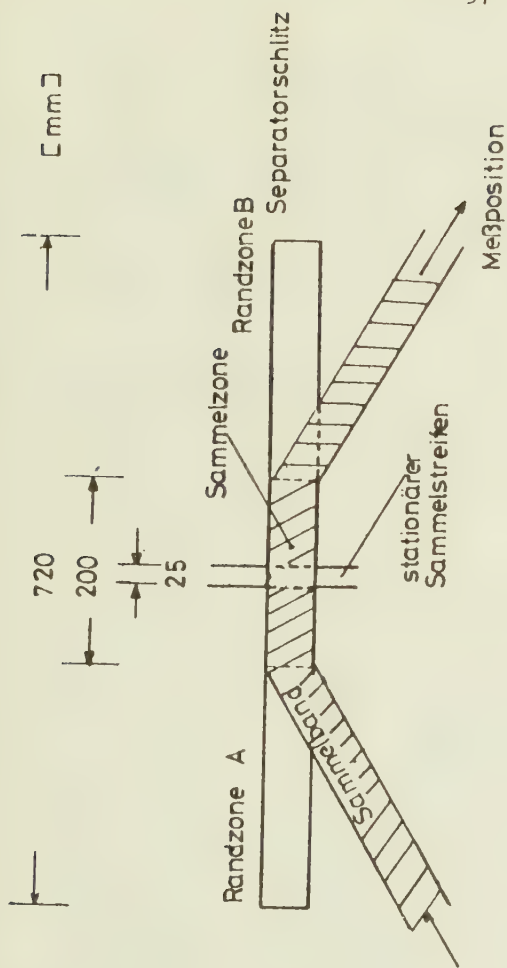


Abb.18 Austrittspalt des Separators; Abgrenzung der Sammelzone

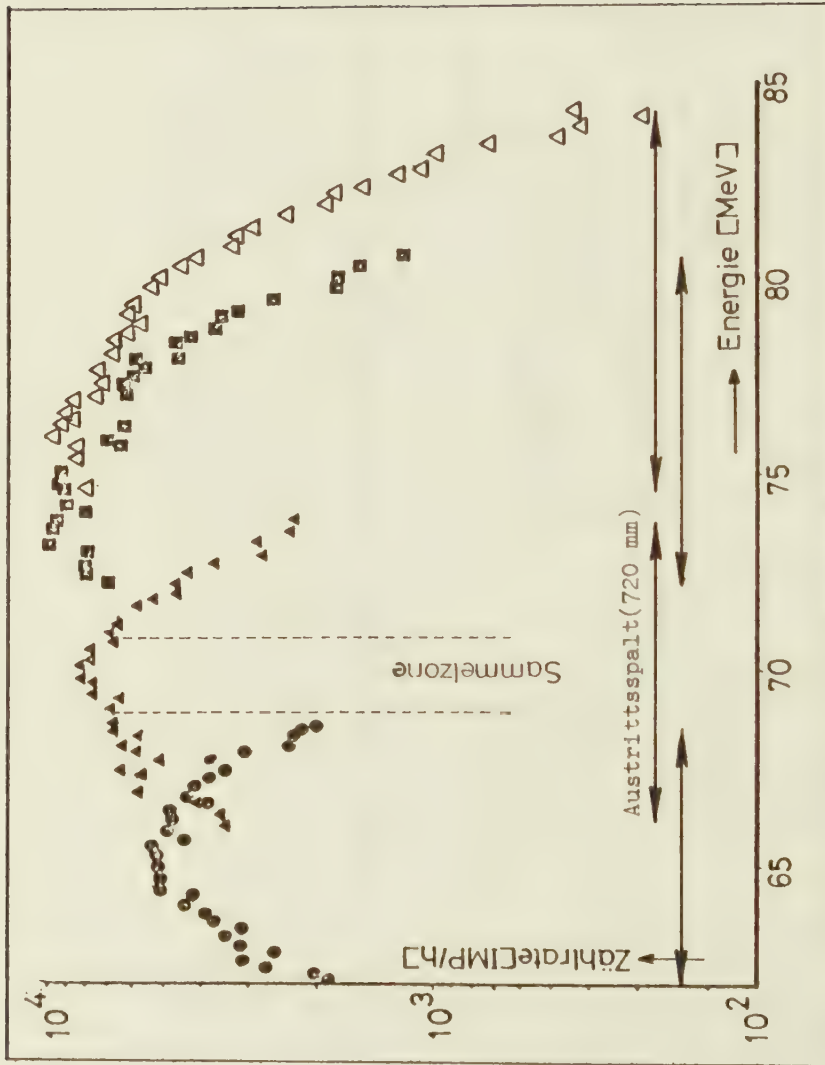


Abb. 19: Intensitätsverteilung entlang des 720 mm langen Austrittsspalt
bei verschiedenen Energien (die Lage des Separatorspaltes ist in
der Abb. bei den einzelnen Messungen angedeutet; der Spalt er-
scheint unterschiedlich lang, da die Energiedispersion nicht gleich ist)

Austrittsspalt nicht in der Ebene des Schlitzes liegt. Für die bei den vorliegenden Versuchen gewählte Sammelzone von 200 mm in der Mitte des Schlitzes spielt dieser Effekt kaum eine Rolle.

Nachweiswahrscheinlichkeit des Ge(Li)-Detektors bei Verwendung des 'Zick-Zack'-Mechanismus

Das durch den 'Zick-Zack'-Mechanismus vor dem Detektor vorbeilaufende Sammelband befand sich in einem mittleren Abstand von 10 mm von der Detektoroberfläche (Schwankungen um ± 1 mm infolge starker Vibrationen des 'Zick-Zack'-Mechanismus bzw. des Tisches auf dem der Ge(Li) stand waren unvermeidbar).

Untersuchungen der Nachweiswahrscheinlichkeit des Detektors in Abhängigkeit vom Ort der bestrahlten Probe im 'Zick-Zack'-Mechanismus wurden durchgeführt.

Eine auf das Sammelband aufgetragene punktförmige Eu-152-Quelle wurde bei diskontinuierlichem Bandlauf zentimeterweise durch den 'Zick-Zack'-Mechanismus am Ge(Li)-Detektor vorbeitransportiert und gemessen.

Aus den γ -Spektren des Eu-152 wurden je eine niederenergetische, eine mittlere und eine hochenergetische γ -Linie ausgewertet. Die erhaltenen Aktivitäten wurden als Funktion des Ortes im 'Zick-Zack'-Mechanismus aufgetragen. Abbildung 20 zeigt diese Kurven für die γ -Linien bei 121.8 keV, 964.0 keV und 1408.1 keV.

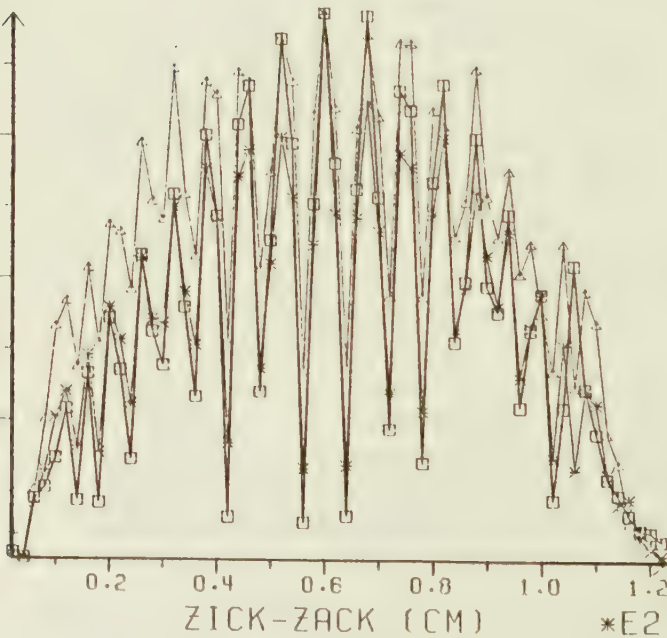
Diese Darstellung zeigt ein gezacktes Profil, das für alle drei Kurven über den gesamten Meßbereich einen ähnlichen Verlauf zeigt. Der gewellte Verlauf der Kurven erklärt sich folgendermaßen:

Maxima treten dort auf, wo sich die Quelle gerade zwischen zwei Führungsrollen des 'Zick-Zack'-Mechanismus aufhält. Die Aktivität wird am stärksten nachgewiesen.

Anders ist es jedoch, wenn sich die Eu-152-Probe hinter oder teilweise hinter den Führungsrollen aufhält, denn dort weisen die Kurven stark ausgeprägte Minima auf.

Abb. 20 Nachweiswahrscheinlichkeit des Systems Ge(Li)-Detektor
'Zick-Zack'-Mechanismus als Funktion des Ortes einer punktförmigen Quelle im Zick-Zack-Mechanismus

(Δ γ -Linie bei 121.8 keV; $\square$ γ -Linie bei 964.0 keV und
* γ -Linie bei 1408.1 keV)



Führt man Messungen bei kontinuierlich laufendem Band durch, so dürfte die Nachweiswahrscheinlichkeit des Detektors die Ausgleichsparabel für die Messwerte darstellen. Das gewellte Profil sollte sich nur bei extrem langsamen Geschwindigkeiten auswirken und außerdem Einfluß auf den diskontinuierlichen Bandlauf haben, wenn verschiedene Meßserien verglichen werden, bei denen in unterschiedlicher Bandposition gemessen wurde.

Wie im folgenden gezeigt, werden die Feinstrukturen bei Beladung einer Bandstrecke von 200 mm praktisch völlig verwischt.

4. Absoluteichung des Aufbaus 'Zick-Zack'-Mechanismus Ge(Li)-Detektor

Mit Hilfe absoluter γ -Quellen wurde der verwendete Ge(Li)-Detektor geeicht. Als γ -Standards wurden Co-57, Co-60, Y-88, Cs-137 und Ba-133 in 20 mm Abstand vom Detektor gemessen, um die absolute Nachweiswahrscheinlichkeit des Ge(Li)-Detektors für eine Punktquelle zu bestimmen.

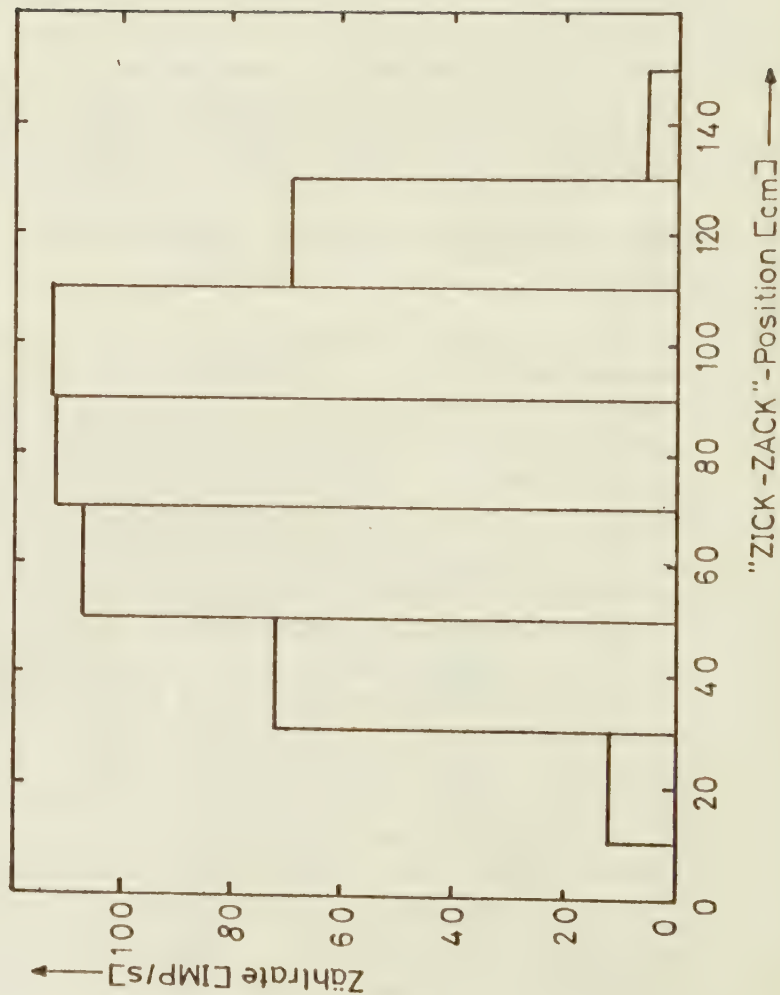
Die Masse A=140 (nach A/Q und Energie aufgetrennt) wurde auf das kontinuierlich betriebene Band gestrahlt, um die relative Nachweiswahrscheinlichkeit des Systems 'Zick-Zack'-Mechanismus-Ge(Li)-Detektor zu ermitteln. Zur Untersuchung der 'Efficiency' des Ge(Li)-Detektors wurde der Zerfall des Nuklids Xe-140 untersucht.

Xe-140 zerfällt mit einer Halbwertszeit von 13.5 s und konnte bei kontinuierlich laufendem Band (Bandgeschwindigkeit 40 mm/s) gut nachgewiesen werden. Die Auswertung wurde mit Hilfe der in [72] und [73] gegebenen Zerfallsdaten dieses Nuklids durchgeführt.

Um die mit Hilfe des Xe-140 aufgestellte Nachweiswahrscheinlichkeitskurve des Ge(Li) absolut zu erhalten mußte die Korrektur zu den gemessenen punktförmigen absoluten γ -Quellen bestimmt werden.

Hierzu wurde bei der mittleren Energie der Masse A=142 diese Spaltproduktmasse auf das stehende Band gestrahlt.

Abb. 21: Nachweiswahrscheinlichkeit des Ge(Li)-Detektors für eine auf Band gestrahlte La-142-Aktivität, die durch den Zick-Zack-Mechanismus transportiert wird



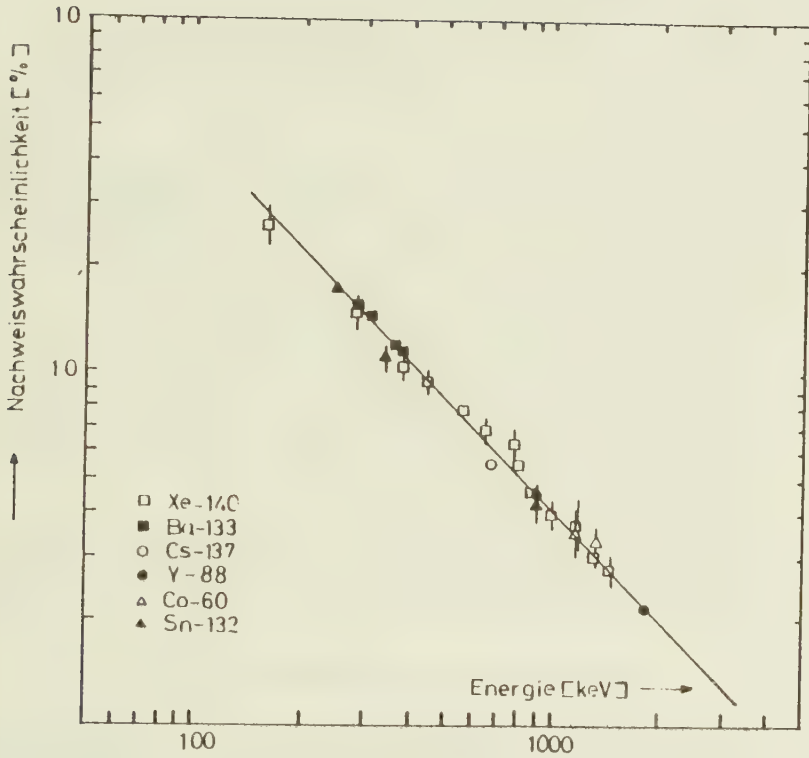


Abb. 22 absolute Nachweiswahrscheinlichkeit des Systems
Ge(Li)-Detektor- 'Zick-Zack'- Mechanismus

Nach dem Zerfall des Ba-142 ($T_{1/2}=10.6$ min) lag die gesamte Kette als La-142 ($T_{1/2}=92.5$ min) vor. Die bestrahlte Zone von 200 mm entsprach dem bei den Experimenten ausgewählten Bereich (siehe unten).

Nachdem La-142 kumuliert vorlag, wurde der Meßstreifen diskontinuierlich 200 mm-weise durch den 'Zick-Zack'-Mechanismus gezogen. Das Profil dieser Messungen ist in Abbildung 21 dargestellt.

Nach beendeter Messung im 'Zick-Zack'-Mechanismus wurde der Sammelstreifen zu einer Punktquelle zusammengerollt und bei 20 mm Detektorabstand gemessen. Das Verhältnis Punktquelle zur integrierten Kurve (Abbildung 21) lieferte den direkten Bezug zu den absoluten Quellen.

Die derart ermittelte absolute Nachweiswahrscheinlichkeit des Systems Ge(Li)-Detektor/'Zick-Zack'-Mechanismus ist in Abbildung 22 aufgetragen. Die Meßpunkte der absoluten Quellen und der Relativmessung mit Xe-140 zeigen annähernd gleiche Steigung.

Eine Prüfung dieser Kurve mit γ -Linien aus dem Zerfall des Zinn-132 (in der Abbildung durch $\blacktriangle$ gekennzeichnet) zeigt gute Übereinstimmung.

3. 2. 6. Arbeitsbereich der verwendeten Targets

Zur Ermittlung des Energiebereiches in dem die Ladungsverteilung untersucht werden kann , wurde die Anzahl der Spaltprodukte in den zu untersuchenden Ketten als Funktion ihrer kinetischen Energie gemessen. Dazu wurde ein Oberflächensperrschichtdetektor (Durchmesser der aktiven Fläche 18 mm) in den Strahlengang des Separators eingeschoben. Abbildung 23 zeigt die Zählrate in den einzelnen Ketten bei verschiedenen Energien. Das Maximum der in die Meßwerte gelegten Kurven gibt die mittlere Energie (E_p) an. Sie wurde nach der eingangs Kap. 1. beschriebenen Schwerpunktmethode berechnet.

Für ein dickes ($400 \mu\text{g}/\text{cm}^2$) ergaben sich beispielsweise

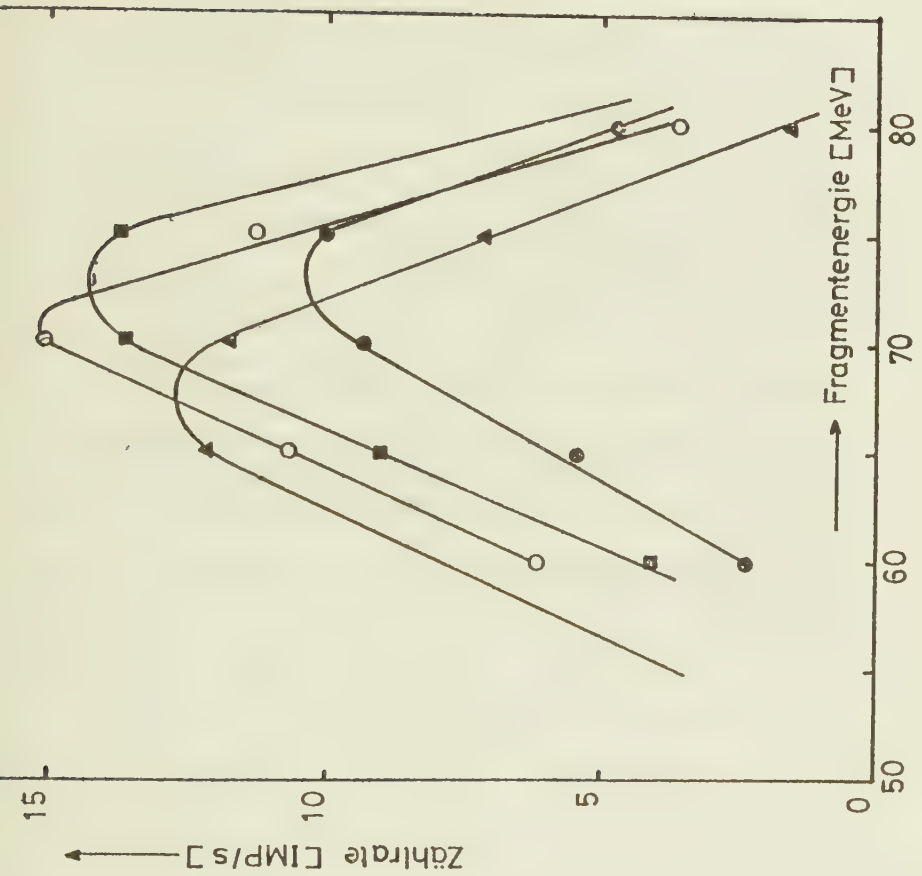


Abb. 23:

Arbeitsbereich bei Verwen-
dung eines dicken Targets

- $A = 132$
- $A = 133$
- $A = 134$
- ▲ $A = 135$

se folgende in Tabelle 19 zusammengestellten Werte. Die aufgeführten Werte wurden alle bei gleicher Ionenladung der Fragmente ($Q = 23^+$) aufgenommen.

Ein dickes Target ($400 \mu\text{g}/\text{cm}^2$) sollte einen gewissen Energieverlust aufweisen, der bei der Kette-132 aus dem Vergleich zu dem in [57] gemessenen Wert von 79.2 MeV bestimmt werden kann.

Der Unterschied beträgt bei einer Ionenladung von 23^+ 6.7 MeV (mittlere gemessene experimentelle Energie: $E = 72.5 \text{ MeV}$) und ist auf den Energieverlust der entstehenden Fragmente im Target zurückzuführen.

Im dünnen Target ($40 \mu\text{g}/\text{cm}^2$) wurde die mittlere Energie für die Kette-132 mit 77.8 MeV ermittelt.

Dieser Wert weicht von den Messungen in [57] um 1.4 MeV ab.

Die Halbwertsbreite der Verteilung wurde mit $8.0 \pm 1.5 \text{ MeV}$ ermittelt.

Tab. 19: Bestimmung des Arbeitsbereiches für das
400 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ -Target von A=132-135

Masse A	mittlere Energie E_p
132	72.5 MeV
133	72.5 MeV
134	70.5 MeV
135	67.4 MeV

3. 2. 7. Auswertung

3. 2. 7. 1. Auswertung der γ -Spektren

Die über System 'Nicole' auf Magnetplatte oder Magnetband gespeicherten Daten können an der PDP 10 des Instituts Laue-Langevin oder in Mainz an der CD 3300 oder PDP 11/45 ausgewertet werden.

Die Auswertung an der PDP 10 umfaßte die Analyse der aufgezeichneten γ -Spektren mit dem Rechenprogramm 'SAMPO', einer dem Rechner PDP 10 angepaßten Version des Originalprogrammes [74].

Mit Hilfe dieses Programmes konnten Daten und Ergebnisse für die γ -Energie der einzelnen Linien und ihre Intensitäten erhalten werden.

Überprüfungen dieses Programmes, das nach Erstellung einer Eichparameterliste für die Peakform und Energie aus Eichspektren die experimentelle Peakform als Gaußkurve mit einem hoch- und niederenergetischen Ausläufer anpaßt, mit Auswertungen per Hand, der Aufsummierung der Kanalinhalte und Subtraktion des Untergrundes, ergab im allgemeinen gute Übereinstimmung.

Im EBCD-Code, einem speziellen IBMcompatiblen BCD-Code, konnten die Daten nach Mainz gebracht werden. Nach der Übertragung der Daten auf BCD-Code an der CD 3300 Rechenanlage des Rechenzentrums der Universität Mainz konnten die γ -Spektren sowohl an der CD 3300 als auch an der PDP 11/45 ausgewertet werden (Anhang III).

Die Analyse der γ -Spektren wurde mit den Programmen 'GSFIT' und 'INTEGRATE' durchgeführt. Diese Programme wurden bereits früher (Kap. 2. 1. 6. 1.) besprochen.

3. 2. 7. 2. Bestimmung der Erzeugungsrate der Nuklide

Die Bildungsraten der bei kontinuierlich betriebenen Sammeln gemessenen Nuklide wurde nach einer in [67, 70] beschriebenen Methode berechnet.

Bei dieser Auswertung müssen folgende Größen berücksichtigt werden, die in Abbildung 24 nochmals erläutert sind:

Der Strom der Spaltprodukte gelangt auf das am 200 mm langen Schlitz vorbeigeführte Band. Durch den Einbau des stationären Streifens, der die Kette kumuliert mißt, wird der auf das bewegte Band treffende Spaltproduktstrahl unterteilt (x_1 und x'_1)

Analog dazu resultieren zwei unterschiedliche Strecken, die das Band befördert werden muß, ehe es in die Meßposition gelangt (x_2 und x'_2). Im Laufe dieses Transportes zerfällt ein Teil der gesammelten Nuklide entsprechend ihrer Halbwertszeit ($T_{1/2}$).

Der dritte Bereich, die Meßzone, ist in beiden Fällen gleich lang und entspricht dem Weg des Bandes im 'Zick-Zack'-Mechanismus (x_3).

Die experimentellen Werte der x_i lagen bei:

$$x_1 = 87.5 \text{ mm}$$

$$x'_1 = 87.5 \text{ mm}$$

$$x_2 = 212.5 \text{ mm}$$

$$x'_2 = 100 \text{ mm}$$

$$x_3 = 800 \text{ mm}$$

Mittels einfacher Exponentialgleichungen kann die vor dem Ge(Li)-Detektor gemessene Aktivität in die Erzeugungsrate der betreffenden Nuklide umgerechnet werden.

Die allgemeine Beziehung ist in Gleichung 23 wiedergegeben:

$$Z_A = \left[R_1 \cdot \left(\sum_{j=1}^i N_{jA} \cdot H_j \right) \right] \quad (23)$$

Es bedeuten:

Z_A γ -Aktivität des Nuklides A

R_i Erzeugungsrate des i-ten Nuklides

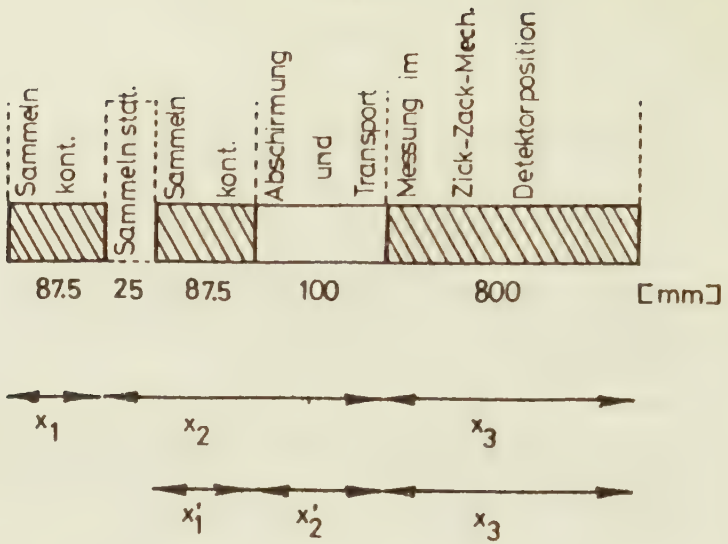


Abb. 24 schematische Darstellung der Sammlung und Messung bei kontinuierlichem Bandlauf

$$\Lambda_{A_j}^i = \frac{\lambda_1 \dots \lambda_j \dots \lambda_A}{(\lambda_1 - \lambda_j) \dots \dots \dots (\lambda_A - \lambda_j)} \cdot \frac{1}{\lambda_j}$$

(nur gültig für $i \neq j$)

$$H_i = v/\lambda \cdot (1 - e^{-\lambda \cdot x_1/v}) \cdot e^{-\lambda \cdot x_2/v} \cdot (1 - e^{-\lambda \cdot x_3/v})$$

$$\lambda \quad \text{Zerfallskonstante} \quad \lambda = \ln 2 / T_{1/2}$$

$$v \quad \text{Bandgeschwindigkeit}$$

Im Falle der Kette-132, bei der wie in Abbildung 4 gezeigt, der Fall der direkten Bildung aus der Spaltung (Sn-132 und Sb-132 (8^-)) und der Bildung aus dem Zerfall des Vorläufers und der Spaltung (Sb-132 (4^-)) vorliegt, resultieren aus Gleichung 23 die Gleichungen 24 und 25.

1. Fall (Sn-132 und Sb-132 (8^-))

$$R_A = Z_A / (H_A \cdot I_\gamma \cdot \epsilon) \quad (24)$$

2. Fall (Sb-132 (4^+))

$$R_B = \frac{Z_B}{H_B \cdot I_\gamma \cdot \epsilon} - \frac{R_A}{H_B} \cdot \left[\frac{\lambda_A}{\lambda_A - \lambda_B} H_B - \frac{\lambda_B}{\lambda_A - \lambda_B} H_A \right] \quad (25)$$

wobei:

Z_A	γ - Aktivität	Sn-132 (bzw. Sb-132 (8^-))
Z_B	γ - Aktivität	Sb-132 (4^+)
I_γ	Linienhäufigkeit der betreffenden γ -Linie	
ϵ	Nachweiswahrscheinlichkeit des Ge(Li)-Detektors	

bedeuten.

Aus dem Zerfallschema des Sb-132 geht hervor, daß die beiden intensivsten γ -Linien des Sb-132 bei 696.8 keV und 973.9 keV von beiden Isomeren gespeist werden.

Das bedeutet, daß die bei diesen Energien bestimmten Zählraten die Summe der Zählraten beider Isomerer darstellen.

Im Gegensatz zu den chemischen Experimenten kann hier jedoch die 150.6 keV Linie des 8^- -Zustandes ausgewertet werden, da keine Aktivität des Te-131 bei dieser Energie zu erwarten ist.

Die Zählrate des 4^+ -Zustandes von Sb-132 wurde durch Subtraktion des längerlebigen (8^-)-Zustandes von den Sammelraten beider isomerer Zustände bei 696.8keV und 973.9 keV gewonnen.

Als weitere Möglichkeit die Zählrate des (4^+)-Zustandes zu erhalten, bot sich die Analyse der nur aus diesem Zustand stammenden 635.6 keV γ -Linie an. Diese Linie war wegen ihrer schwachen Intensität von nur 10 % statistisch relativ schlecht belegt, sodaß diese Werte nur zur Kontrolle der aus den Mischlinien berechneten Bildungsrate verwendet wurden.

Die Bildungsrate von Te-132 auf dem stationären Sammelstreifen (kumuliertes Te-132) läßt sich nach Gleichung 2 ermitteln:

$$R_{\text{Sum}} = \frac{Z_{\text{Te}}}{B \cdot I_{\gamma} \cdot \epsilon} \cdot e^{\lambda \cdot t_a} \cdot (1 - e^{-\lambda t_b})^{-1} \quad (26)$$

R_{Sum} Bildungsrate kumuliertes Te-132 pro Spaltlänge:

$$R_{\text{Sum}} = R_{\text{Sn}} + R_{\text{Sb}}(8^-) + R_{\text{Sb}}(4^+) + R_{\text{Te}}$$

B Breite des Sammelstreifens [mm]

Z_{Te} γ - Aktivität Te-132 pro Zeiteinheit

I_{γ} Linienhäufigkeit der γ -Linie

ϵ Nachweiswahrscheinlichkeit des Ge(Li)-Detektors

t_b Sammelzeit [min]

λ Zerfallskonstante Te-132 [min^{-1}]

Die Anzahl der γ -Zerfälle Te-132 (Z_{Te}) wurde über die 228 keV γ -Linie gemessen.

Das unabhängig gebildete Te-132 (R_{Te}) wird aus der Bildungsrate des kumulierten Te-132 (R_{Sum}) durch Subtraktion der Bildungsraten von Sn-132 (R_{Sn}), Sb-132(4^+) ($R_{\text{Sb}}(4^+)$), und Sb-132(8^-) ($R_{\text{Sb}}(8^-)$) berechnet.

Die Berechnung der Bildungsraten nach den Gleichungen 24 bis 26, sowie die Ermittlung der fraktionalen Ausbeuten wurde mit Hilfe eines speziell zu diesem Zweck entwickelten Rechenprogramms durchgeführt (Anhang II).

3. 2. 8. Ergebnisse

Die Meßergebnisse und Versuchsbedingungen sind in Tabelle 20 zusammengefaßt.

Die aus diesen Werten mittels obiger Gleichungen ermittelten Erzeugungsraten der einzelnen Nuklide sind im Anschluß in Tabelle 21 aufgeführt.

Bei dieser Zusammenstellung wird die Bildungsrate des Sn-132 kumuliert und die der Antimonisomeren bzw. des Te-132 unabhängig angegeben. Die angegebenen Werte für Sn-132 und Sb-132 (4^+) stellen für die in Tabelle 20 aufgeführten γ -Linien Mittelwerte dar.

Für das Sb-132(8^-) und Te-132 wurde nur eine γ -Linie (150.6 keV bzw. 228 keV) ausgewertet.

Die fraktionalen Ausbeuten, die sich aus dem Verhältnis der Bildungsrate eines Nuklides zur Bildungsrate des kumulierten Te-132 errechnet, sind für Sn-132, Sb-132 (beide Isomere) und Te-132 bei beiden Targets für verschiedene Energien und Ionenladungen in den Tabellen 22 und 23 aufgeführt.

Der Anteil der fraktionalen Ausbeute des J-132 kann im gemessenen Energiebereich vernachlässigt werden. Ein Vergleich von Oberflächensperrschichtdetektorwerten (Erfassung aller Kettenglieder) und den Werten für das kumulierte Te-132 zeigt keine meßbaren Unterschiede.

Die in den Tabellen mitangegebenen Fehler wurden aus der Fehlerfortpflanzung der Einzelfehler ermittelt [35].

Wie aus den Tabellen 20 bis 23 zu sehen ist, wurden keine Messungen bei dem Ionenladungszustand $Q=22^+$ ausgeführt, da hier wegen zu großer Kontaminationsgefahr durch Nachbarketten (gleiches $A/Q = 6.0$) die Ergebnisse als weniger zuverlässig angesehen wurden.

3. Zusammenfassung der Versuchsbedingungen und Messergebnisse zur Bestimmung der fraktionierten Ausbeuten in der Kette-132 als Funktion der Rückstoßenergie und Ionenladung der Fragmente (Bandgeschwindigkeit 13.3 mm/s).

Targetdicke ($\mu\text{g cm}^{-2}$)	Ionenladung Q	Energie (MeV)	Elektr. Feld (kV)	Magn. Feld (Gauß)	Zählzeit (min)	Zählrate von:						132Te		
						Zinn-132		Antimon-132		Gammalinie (keV)	635*		696*	974*
						Gammalinie (keV)		Gammalinie (keV)						
						247*	339*	898*	150*					
40	23	70	330.8	1507.8	210	77	58	20	392	214	205	223	228	
40	23	78	368.6	1591.7	120	1867	1320	502	1880	122	1780	1767	159	
40	23	81.5	385.2	1627.0	120	1903	1502	550	1139	187	1524	1513	401	
40	23	85	401.7	1661.5	185	1454	1094	395	360	122	715	648	246	
400	23	60	283.6	1196.0	190	102	126	-	150	-	226	473	166	
400	23	65	307.2	1453.0	140	1124	921	102	2259	321	1875	1847	309	
400	23	72.5	342.7	1134.7	100	4802	3705	1351	5245	797	4993	4650	779	
400	23	76.3	360.4	1573.7	90	3916	3307	1184	5739	500	2960	2922	336	
400	23	85	401.7	1661.5	207	789	651	280	1157	87	319	327	100	
400	20	72.5	394.0	1764.7	60	7446	5906	2402	4847	-	4736	4380	535	
400	21	72.5	375.3	1680.7	101	8328	6670	465	6680	-	8157	5894	1166	
400	24	72.5	328.4	1470.3	80	1789	1838	526	2746	-	2686	2534	315	

* Werte umgerechnet auf Impulse/Stunde

Tab. 21: Bildungsraten der Nuklide mit A=132 als Funktion der Rückstoßenergie und der Ionenladung (Zinn: 247 keV; Antimon (4^+): 696 keV)

Target- dicke [$\mu\text{g}/\text{cm}^2$]	Energie [MeV]	Ionenla- dung Q	Bildungsraten: [Impulse/h]:			
			^{132}Sn	$^{132}\text{Sb}(8^-)$	$^{132}\text{Sb}(4^+)$	^{132}Te
40	70	23	127.8	770.1	1026.2	2912.8
40	78	23	3099.6	3693.2	7765.5	12623.3
40	81.5	23	3159.3	2237.5	6357.8	4670.3
40	85	23	2413.9	707.2	2446.3	2687.6
400	60	23	14.6	294.7	97.4	8088.3
400	65	23	1866.1	4437.7	8984.7	10850.4
400	72.5	23	7924.8	10106.8	21680.0	23241.7
400	76.3	23	6501.3	11274.0	12138.4	3567.2
400	85	23	1309.9	2272.9	957.7	159.0
400	72.5	20	12361.8	9521.7	18294.0	31285.9
400	72.5	21	13826.1	13122.5	35803.3	30702.1
400	72.5	24	2970.1	5394.1	12700.1	11969.9
						Kette- 132
						4837.2
						27181.6
						16424.9
						8255.5
						8495.0
						26132.8
						62953.3
						33480.9
						4699.5
						71463.4
						93454.1
						33034.2

Tab. 22: Fraktionale Ausbeuten [%] als Funktion der kinetischen Energie der Fragmente bei verschiedenen Targetdicken und einer Ionenladung von $Q=23^+$

Energie	Ladung	Targetdicke [$\mu\text{g}/\text{cm}^2$]	Sn-132	Sb-132(8^-)	Sb-132(4^+)	TeiIur-132
70	23	40	2.6 ± 0.5	15.9 ± 1.8	21.2 ± 2.6	60.2 ± 8.7
78	23	40	11.4 ± 1.6	13.6 ± 1.4	28.6 ± 3.3	46.4 ± 9.0
81.5	23	40	19.2 ± 2.7	13.6 ± 1.4	38.7 ± 4.8	28.4 ± 9.9
85	23	40	29.2 ± 4.2	8.6 ± 1.0	29.6 ± 5.1	32.6 ± 10.5
60	23	400	0.2 ± 0.03	3.5 ± 0.5	1.1 ± 0.2	95.2 ± 8.1
65	23	400	7.1 ± 0.9	16.9 ± 3.1	34.4 ± 3	40.2 ± 9.1
72.5	23	400	12.6 ± 1.8	16.1 ± 1.6	34.4 ± 3.9	56.9 ± 9.2
76.5 [*]	23	400	19.4 ± 2.7	33.7 ± 3.4	36.3 ± 4.6	10.7 ± 10.2
85 [*]	23	400	27.9 ± 4.0	48.4 ± 5.1	20.4 ± 4.5	3.4 ± 11.3

* Die Ergebnisse für Sb^{8-} und Te fallen aus nicht ganz geklärten Gründen aus der normalen Systematik der Meßwerte. Eine weitere Versuchsserie mit einem dünnen Target wurde deshalb durchgeführt. Die Ergebnisse, die jedoch erst nach Abschluß der Arbeit vorlagen und in Kürze veröffentlicht werden, bestätigen die Resultate, wie sie für das dünne Target erhalten wurden.

Tab. 23: Fraktionale Ausbeuten der Nuklide der Kette-132 als Funktion der Ionenladung (400 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ -Target; Energie 72.5 MeV)

Ladung	fraktionale Ausbeuten [%]			
	^{132}Sn	$^{132}\text{Sb}^{\text{--}}$	$^{132}\text{Sb}^{4+}$	^{132}Te
20	17.3 ± 3.8	13.3 ± 3.3	25.6 ± 6.2	43.7 ± 8.0
21	14.8 ± 2.1	14.0 ± 1.4	38.3 ± 4.3	32.9 ± 9.5
22	-	-	-	-
23	12.6 ± 1.9	16.1 ± 1.6	34.4 ± 3.9	36.9 ± 9.2
24	9.0 ± 1.3	16.3 ± 1.7	38.4 ± 4.0	36.2 ± 9.2

3. 2. 9. Diskussion

Die Messungen der Ladungsverteilung in der Kette-132 als Funktion der Ionenladung und der Rückstoßenergie der Fragmente wird im folgenden getrennt behandelt, da es sich um zwei grundsätzlich verschiedene Effekte handelt.

3. 2. 9. 1. Ladungsverteilung in der Kette-132 als Funktion der Ionenladung

In Abbildung 25 wurde die fraktionale Ausbeute der einzelnen Nuklide in % gegenüber der Ionenladung, mit der die Spaltprodukte das Target verlassen, aufgetragen.

Diese Untersuchungen überdecken einen Bereich von $Q=20^+$ bis $Q=24^+$. Zur besseren Veranschaulichung des Einflusses wurde für die Meßwerte die Ausgleichsgerade in die Auftragung mit eingezeichnet.

Es zeigt sich, daß die Ausbeuten, wenn überhaupt, dann nur sehr schwach von der Ionenladung abhängen. Dies entspricht der Erwartung der Atomphysik, besonders da die verbleibenden Atomrümpfe von 26 bis 32 Elektronen nicht im Bereich abgeschlossener Elektronenschalen liegen.

Berechnet man aus den fraktionalen Ausbeuten die wahrscheinlichste Kernladung Z_p (siehe Tabelle 24) und trägt sie gegen die Ionenladung auf (Abbildung 26), so kann man den in dieser Auftragung gezeigten geringen Einfluß der Ionenladung auf die Ladungsverteilung quantitativ ausdrücken.

Der Unterschied des Z_p -Wertes zwischen der Ladung $Q=20^+$ und $Q=24^+$ beträgt 0.12 Ladungseinheiten und wird durch die Einzelfehler der Z_p -Werte fast vollkommen überdeckt.

Die schwache Abhängigkeit der Kernladungsverteilung von der Ionenladung erleichtert die Messungen der Ladungsverteilung als Funktion der Rückstoßenergie.

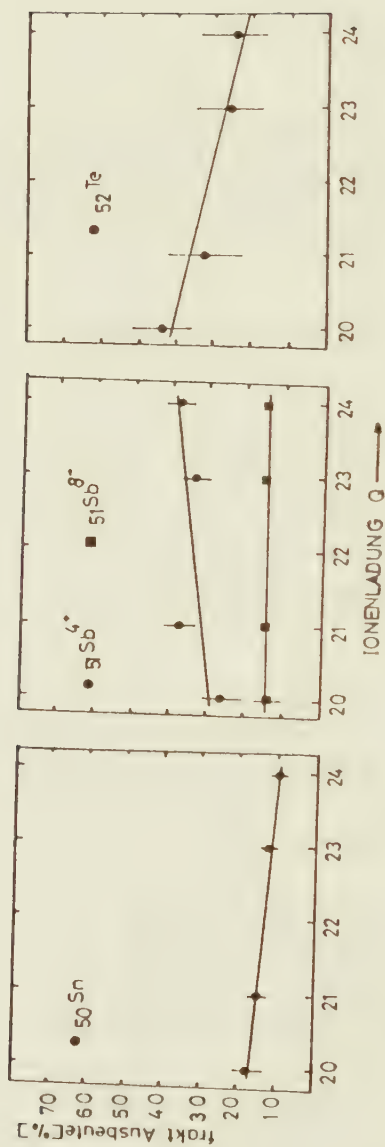


Abb. 25 Fraktionale Ausbeuten in der Kette-132 in Abhängigkeit von der Ionenladung der Fragmente

Tab. 24: Wahrscheinlichste Kernladung Z_p in der Kette-132 bei U-235 (n_{th}, f) als Funktion der Ionenladung

Ladung Q	Z_p
20	$51.21^{+0.3}$
21	$51.18^{+0.1}$
22	
23	$51.24^{+0.3}$
24	$51.27^{+0.15}$

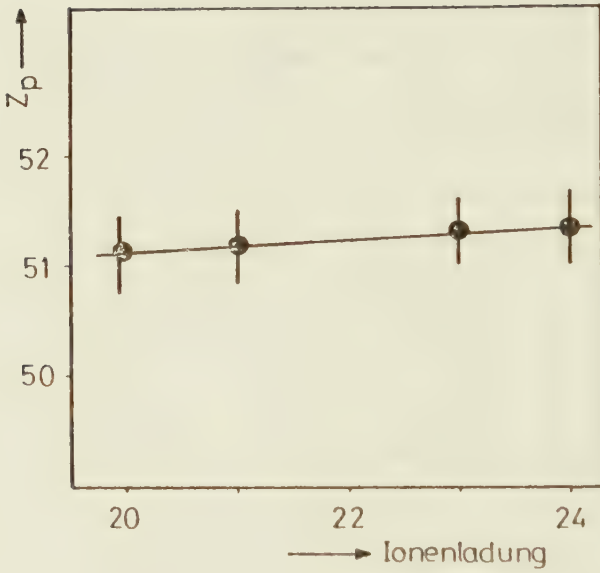


Abb. 26: Wahrscheinlichste Kernladung in der Kette-132 bei U-235 ($n_{th,f}$) als Funktion der Ionenladung

wendig zu sein über alle Ionenladungszustände zu summieren, sondern es genügt an einem charakteristischen Ladungszustand ($Q=23^+$) die Energieabhängigkeit zu verfolgen.

Im folgenden wird der Ionenladungszustand $Q=23^+$ in Abhängigkeit von der kinetischen Energie der Fragmente untersucht.

3. 2. 9. 2. Ladungsverteilung in der Kette-132 als Funktion der Rückstoßenergie der Fragmente

Messungen der Ladungsverteilung in der Kette-132 als Funktion der Rückstoßenergie wurden sowohl mit einem dicken ($400 \mu\text{g}/\text{cm}^2$) als auch mit einem dünnen Target ($40 \mu\text{g}/\text{cm}^2$) durchgeführt. Da, wie bereits in Kap. 3. 2. 6. gezeigt wurde, die Messungen beim dünneren Target größere Genauigkeit haben sollten, wurde die Diskussion der Ergebnisse über die Energieabhängigkeit auf die Messung des dünnen Targets beschränkt.

Die Bildungsraten der einzelnen Nuklide aus Tabelle 21 (dünnnes Target) sind gegen die Rückstoßenergie der Fragmente in Abbildung 27 aufgetragen.

Die für dieses Target bestimmten mittleren Energien der Nuklide^{*} sind neben den Werten für das dicke Target in Tabelle 25 zusammengefaßt.

Der Unterschied der mittleren Energien in beiden Targets rührt von der unterschiedlichen Dicke und dem daraus resultierenden unterschiedlichen Energieverlust her.

Aus der Tab. 25 und aus Abb. 27 erkennt man deutlich, daß die mittlere kinetische Rückstoßenergie für Sn-132 über der bereits vorher ermittelten mittleren Energie der Kette (Kap. 3. 2. 6.) liegt. Dagegen findet man für

* Die mittleren Energien wurden, wie einleitend Kap. 1 als Schwerpunkte der Verteilung, die Breite der Ver-

Tab.25: Zusammenfassung der mittleren experimentellen Rückstoßenergien der Nuklide der Kette-132 in beiden Targets: (Ionenladung $Q=23^+$)

Isotop	mittlere Energie (MeV)		Breite der Energieverteilung dünnes Target
	dickes T.	dünnes T.	
Sn-132	73.2	80.7 ^{+1.2}	8.8 ^{+1.5}
Sb-132 ^l	72.0	78.6 ^{+1.2}	8.5 ^{+1.5}
Sb-132 ^k	72.0	77.3 ^{+1.2}	8.3 ^{+1.5}
Te-132	71.2	76.8 ^{+1.2}	8.1 ^{+1.5}
mittlere Energie der Kette			8.0 ^{+1.5}
72.5 77.8 ^{+1.2}			

Indices: l: langlebiger 8^- -Zustand

k: kurzlebiger 4^+ -Zustand

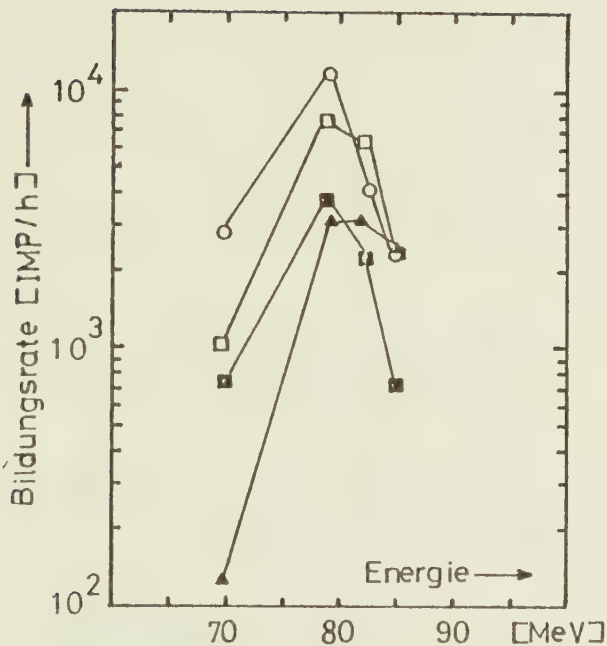


Abb. 27 Bildungsraten der Nuklide als Funktion der Rückstoßenergie

- ▲ Sn-132
- Sb-132 (8⁻)
- Sb-132 (4⁺)
- Te-132

die anderen Kettenglieder eine Verteilung um diesen Wert oder wesentlich darunter.

Außerdem zeigt sich eine Streuung des Mittelwertes der Verteilung, die etwa 10 % der mittleren Energie ausmacht. Für Zinn ist die Verteilung jedoch breiter als für seine Kettennachbarn.

Diese Ergebnisse bestätigen die in [6] geäußerten Erwartungen.

Die aus den Bildungsraten der Nuklide berechneten fraktionalen Ausbeuten (Tabelle 23) für das $40 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ -Target sind in Abbildung 28 als Funktion der Rückstoßenergie der Fragmente dargestellt.

Deutlich erkennt man das Anwachsen der fraktionalen Zinn- ausbeute im gemessenen Energiebereich von 70 MeV bis 85 MeV. Diese Zunahme entspricht etwa einem Faktor 10, von 2.6 % auf 29.2 % .

Im gleichen Maße, wie die fraktionale Zinn- ausbeute zunimmt, zeigt sich eine Abnahme der Te-132- Ausbeute von 60.2 % auf 32.5 %.

Dagegen ändert sich die Ausbeute der beiden Isomeren des Sb-132 mit zunehmender Energie weniger stark. Die Ausbeute des 4^+ -Zustandes nimmt offenbar etwas zu, während das 8^- -Isomere keine Änderung zeigt.

Auch in dieser Abbildung ist zur besseren Illustration des Energieeinflusses die wahrscheinlichste Verbindungsgerade zwischen die Meßpunkte gelegt.

Noch etwas deutlicher als in dieser Abbildung, zeigt sich die Änderung der fraktionalen Ausbeuten beim Vergleich der fraktionalen Ausbeuten zweier Nuklide. Diese Abhängigkeit wurde in Abbildung 29 dargestellt. Aus dem Verhältnis Zinn-132 zu seinen Kettennachbarn erkennt man deutlich das starke Anwachsen der Zinn- ausbeute mit wachsender Energie.

Die Spinverteilung, das Verhältnis des 8^- zum 4^+ -Zustand des Sb-132 ist in Abbildung 30 als Funktion der Rückstoß

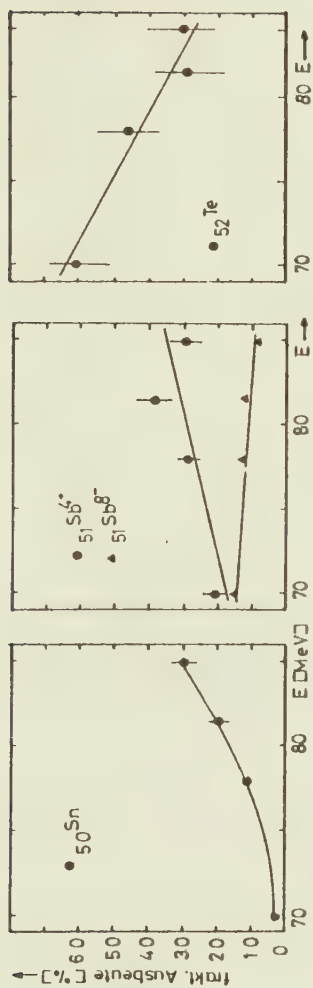


Abb. 28 Fraktionale Ausbeuten als Funktion der Rückstoßenergie der Fragmente ($Q = 23^\circ$)

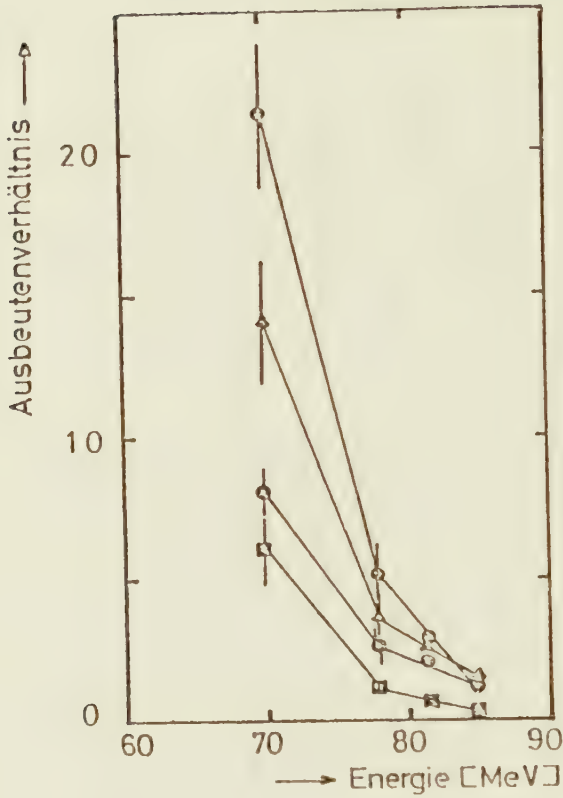


Abb. 29: Verhältnis der fraktionalen Ausbeute von den Antimon-132-Isomeren und Tellur-132 zu Zinn-132

- Te/Sn
- ▲ Sb^{I+k}/Sn
- Sb^k/Sn
- Sb^I/Sn

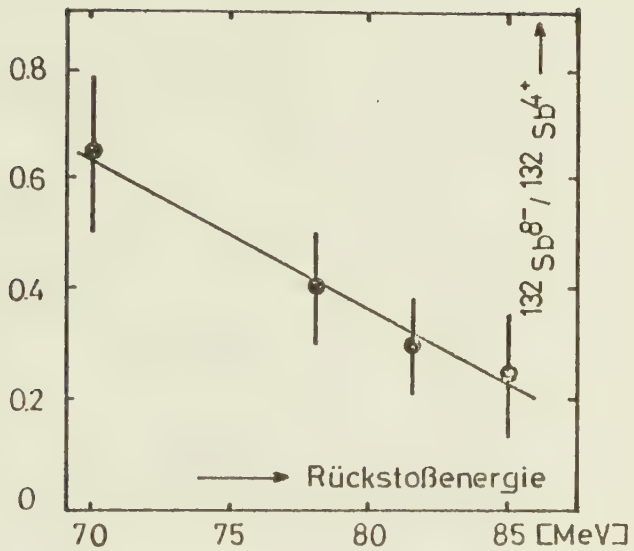


Abb.30 Verhältnis des 4.2 min $^{132}\text{Sb}^{8-}$ zum 2.8 min $^{132}\text{Sb}^{4+}$ als Funktion der Rückstoßenergie

energie aufgetragen.

Es zeigt sich, daß das Verhältnis der beiden Antimonisomeren sich mit zunehmender Rückstoßenergie der Fragmente ändert. Im untersuchten Energiebereich zwischen 70 MeV und 85 MeV ergibt dies einen Anstieg des 4^+ -Zustandes um den Faktor 3.

Dieser massenseparatorisch ermittelte Wert des Isomerenverhältnisses kann bei der mittleren Energie mit bereits vorliegenden Ergebnissen verglichen werden, wie dies bereits in Kap. 2. 2. 1. geschah. Das Ergebnis der chemischen Untersuchung in dieser Arbeit und der vorliegende Wert stimmen innerhalb der Fehlergrenzen überein.

Die aus den fraktionalen Ausbeuten berechneten und in Tab. 26 zusammengestellten Z_P -Werte als Funktion der Rückstoßenergie sind in Abb. 31 aufgetragen.

Die wahrscheinlichste Kernladung nimmt innerhalb des gemessenen Energiebereichs deutlich mit wachsender Energie ab. Ein Verschieben des Z_P -Wertes zu niedrigerem Z ist zu beobachten. Diese Verschiebung, die auch im leichten Ast der Spaltprodukte gefunden wird [7], läßt sich verstehen als eine Konsequenz der Abnahme der prompten Neutronenemission mit wachsender kinetischer Energie der Fragmente, die zwangsläufig zu neutronenreicheren Kernen führen muß.

In der Kette-132 liegt die mittlere Anzahl der prompt emittierten Neutronen bei etwa 0.5 [3, 57] ; d.h. in erster Näherung kann man annehmen, daß prompte Neutronen im wesentlichen nur von Fragmenten emittiert werden, deren kinetische Energie geringer ist als der Mittelwert. Dies führt zu der Schlußfolgerung, daß die Emission prompter Neutronen bei einer Energie der Fragmente von 81.5 MeV praktisch abgeschlos-

Tab. 26: Wahrscheinlichste Kernladung Z_p in der Kette-132 bei Uran-235 ($n_{th,f}$) als Funktion der Rückstoßenergie der Fragmente ($40 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ -Target, $Q = 23^+$)

Energie [MeV]	Z_p	σ
70	51.58 ± 0.1	0.55
78	51.35 ± 0.08	0.67
81.5	51.09 ± 0.10	0.68
85	51.03 ± 0.12	0.79

sen ist. Interessanterweise ändert sich, wie aus der Abb. 31 hervorgeht, der Z_p -Wert auch im Bereich zwischen 81.5 und 85 MeV nicht mehr.

Die Ladungsverteilung ist in Abb. 32 bei den verschiedenen gemessenen experimentellen Rückstoßenergien aufgetragen. Die ausgezogene Kurve stellt eine Gauß'sche Normalverteilung mit $\sigma = 0.56$ dar, deren Mittelwert auf die wahrscheinlichste Kernladung Z_p der experimentellen Ausbeuten bezogen ist.

Man erkennt eine mehr oder weniger gute Übereinstimmung zwischen den gemessenen und berechneten Daten.

Die Abweichungen von der Normalverteilung sollen diskutiert werden. Der Energiebereich von 70 MeV-81.5 MeV soll zunächst gesondert untersucht werden.

Bei allen drei Auftragungen erkennt man deutlich, daß die Ausbeutewerte für gerade Z-Nuklide, Zinn ($Z = 50$) und Tellur ($Z = 52$), über der ausgezogenen Kurve liegen. Die Ausbeute von Sb-132 ($Z = 51$) dagegen liegt unterhalb der Kurve. Dieser Befund weist auf einen Einfluß der Protonenpaarung hin, der ein bevorzugtes Auftreten der geradzahligen Nuklide vorhersagt.

Entsprechend den Ergebnissen von Amiel und Feldstein [5], die einen Gerade-Ungerade-Effekt von $\pm 25 \%$ bei der Spaltung von U-235 mit thermischen Neutronen ermittelten, wurden in Abb. 32 zwei Kurven gestrichelt eingezeichnet, die sich aus der durchgezogenen Kurve durch Multiplikation mit 1.25 bzw. 0.75 ableiten ließen. Die Meßwerte für Antimon (u) und Tellur (g) (E_{kin} : 70,78 und 81.5 MeV) fallen recht gut in den entsprechenden Bereich, der durch die gestrichelten Kurven begrenzt wird, und zeigen damit einen Gerade-Ungerade-Effekt in der erwarteten Größenordnung an.

Die Meßwerte für Zinn (g) liegen etwas höher als die obere gestrichelte Kurve. Dies könnte als ein Hinweis auf einen schwachen Einfluß des doppelten Schalenabschlusses ($Z = 50$, $N = 82$) gedeutet werden. Es ist beachtlich, daß die Größe des Gerade-Ungerade-Effektes sich im Energiebereich von 70 - 81.5 MeV nicht merklich ändert. Anscheinend wird dieser Effekt durch die intensive Emission prompter Neutronen bei niedrigen Rückstoßenergien nicht verwischt. Hier spielt möglicherweise eine bevorzugte Bildung gerader Nuklide bei der Neutronenemission selbst eine Rolle.

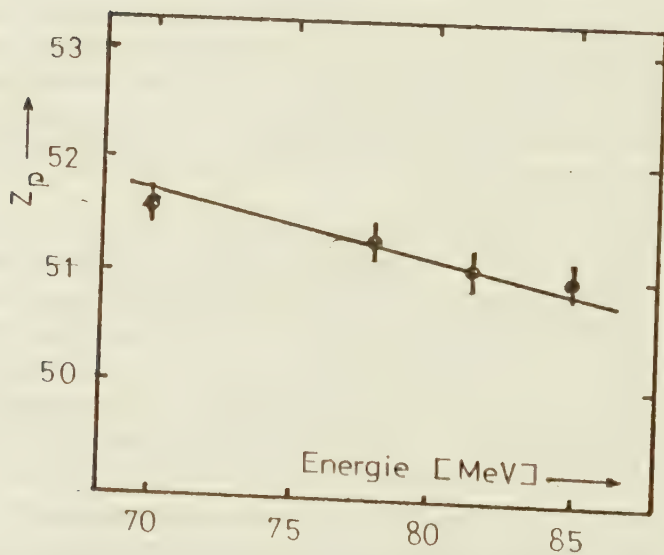
Die Verschiebung der Meßwerte nach rechts in Abb. 32 mit wachsender kinetischer Energie beruht auf der Verschiebung des Z_p -Wertes, die schon anhand von Abb. 31 besprochen wurde, und die auf ein graduelles Verschwinden der Emission prompter Neutronen zurückgeführt werden kann.

Betrachten wir nun die Meßwerte bei 85 MeV, so zeigt sich plötzlich eine ungewöhnliche Verstärkung des Gerade-Ungerade-Effektes. Die Ausbeuten von Zinn ($Z = 50$) und Tellur ($Z = 52$) liegen wesentlich über der berechneten Normalverteilung. Es sieht so aus, als würde man sich bei 85 MeV einer Schwelle nähern, bei der die Anregungsenergie am Zerreißpunkt nicht mehr ausreicht, um Nukleonenpaare aufzubrechen.

Neben dem erkennbaren Schaleneinfluß zwischen $E = 70$ MeV und $E = 81.5$ MeV findet man einen weiteren Hinweis auf einen Schaleneffekt, wenn man die Verteilung der absoluten Ausbeuten als Funktion der Rückstoßenergie betrachtet, wie sie in Abb. 33 dargestellt ist.

Da für den gesamten Energiebereich nur vier Meßpunkte vorliegen, wurden die Meßwerte mit Geraden verbunden. Das Verhalten der Antimon- und Tellurausbeuten erscheint völlig normal. Zinn-132 zeigt dagegen bei

Abb 31 Darstellung Z_p als Funktion der Rückstoß-
energie



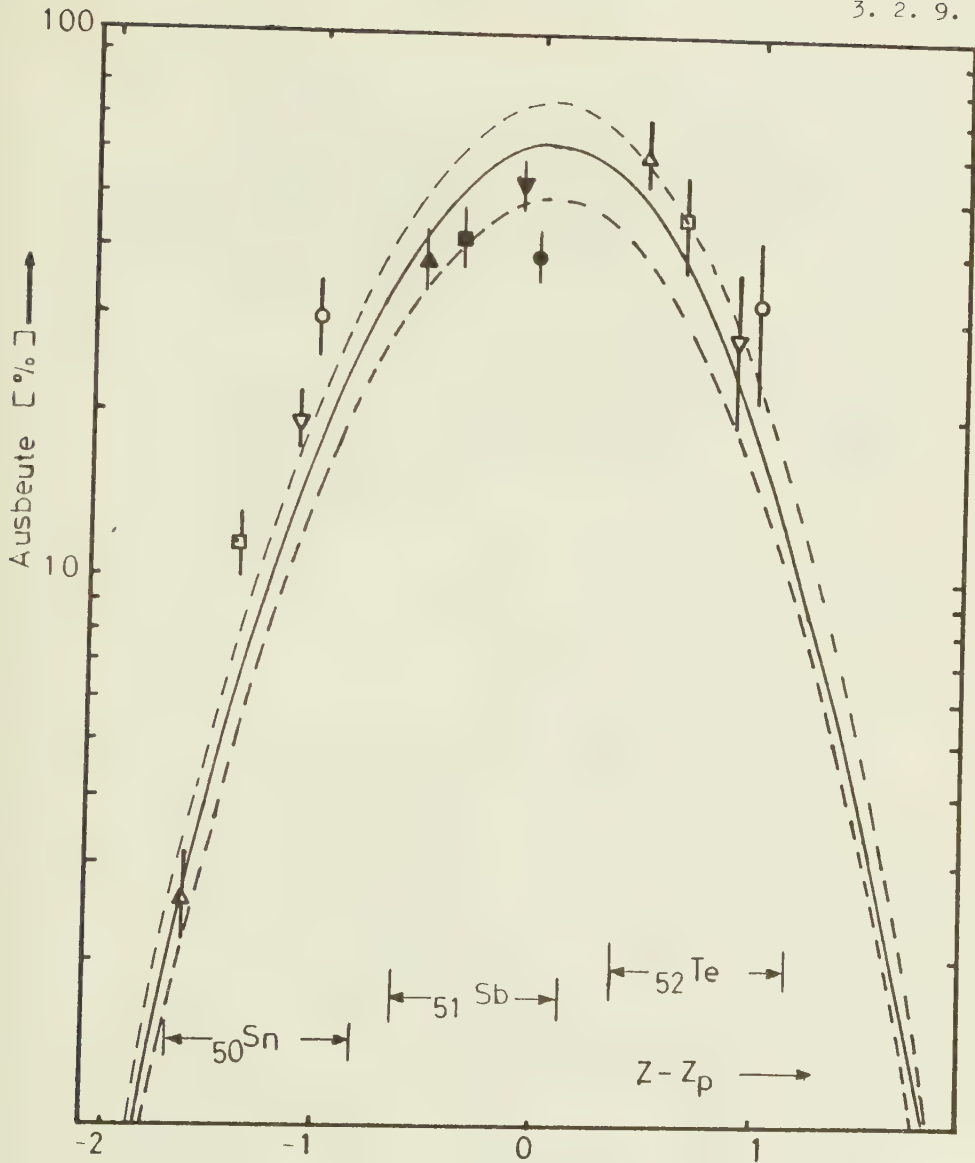
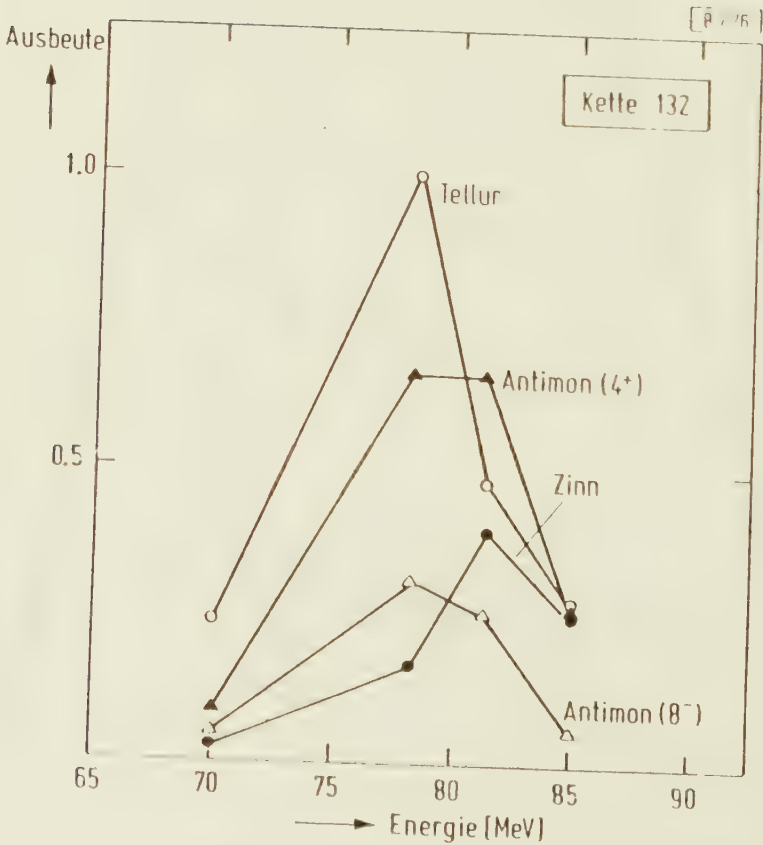


Abb. 32: Ladungsverteilung in der Kette-132 bei $\text{U-235}(n_{\text{th}}, f)$ bei verschiedenen Rückstoßenergien der Fragmente ($Q=23^+$)

▲ 70 MeV ■ 78 MeV ▼ 81.5 MeV ● 85 MeV

Abb. 33: Absolute Ausbeuten der Kette-132 bei der Spaltung von U-235 mit thermischen Neutronen als Funktion der Rückstoßenergie ($Q = 23^+$, $40 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ -Target)



der mittleren Energie $E = 78 \text{ MeV}$ einen deutlichen Einschnitt, der dadurch entstanden sein könnte, daß sich bei Zinn-132 zwei Energieverteilungen überlagern. Die niederere Verteilung entspräche der Verteilung sekundär gebildeten Zinns, während sich bei höheren Energien in stärkerem Maße die primären Produkte finden.

Quantitative Angaben über die untersuchten Effekte können erst in dem Moment gemacht werden, wenn weitere Untersuchungen, die sich auch auf die Nachbarketten erstrecken, vorliegen.

4. Zusammenfassende Diskussion der Arbeit

Mit Hilfe radiochemischer Trennmethoden untersuchte Ausbeuten in der Kette-132 zeigen bei der Spaltung von Plutonium-239 mit thermischen Neutronen genauso wenig eine Ubereinstimmung mit massenseparatorischen Werten [25] wie bei der Spaltung von U-235 (n_{th},f) [24, 27].

Auch die radiochemisch gemessenen Ladungsverteilungen in der Kette-132 bei anderen Spaltungsreaktionen, U-233 (n_{th},f) [24] und Cf-249 (n_{th},f) [diese Arbeit] können keine dominierende Rolle des Zinn-132 in der Ladungsverteilung dieser Kette feststellen.

Es wurden Versuche durchgeführt, um zu prüfen, ob die Diskrepanz der Ausbeutewerte bei U-235 (n_{th},f) auf unterschiedliche Versuchsbedingungen, wie die Auswahl einer bestimmten kinetischen Rückstoßenergie oder einer bestimmten Ionenladung der Fragmente in [27] zurückgeführt werden kann.

Die Untersuchungen am Massenseparator 'Lohengrin' in Grenoble, einem zu dem in [27] verwendeten Instrument analogen Separator, zeigen zwar eine Verschiebung der wahrscheinlichsten Kernladung Z_p zu niederem Z hin, wenn man die Messungen bei höheren kinetischen Rückstoßenergien der Fragmente durchführt.

Der gefundene Z_p -Wert liegt jedoch auch bei der höchsten noch meßbaren Rückstoßenergie von 85 MeV, d.h. ca. 7 MeV über der mittleren Energie der Kette, und um ca. 5 MeV über dem Arbeitsbereich von Konecny et al. [27] mit $Z_p = 51.09$ noch weit über dem von Konecny gefundenen Wert von $Z_p \approx 50$.

Nach den Ergebnissen dieser Arbeit und der von Clerc et al. [7] in der Kette-132 bestimmten mittleren Kernladung kann man die radiochemischen Werte von

Naeumann et al. [24] bestätigen. Für Pu-239 ($n_{th,f}$) verwendeten Gunther et al. [25] die gleichen Versuchsbedingungen wie Konecny et al. [27]. Die Erklärung der Diskrepanz zu den radiochemischen Werten sollte deshalb entsprechend sein.

Bei der Untersuchung der Ladungsverteilung in der Kette-132 von der kinetischen Energie der Fragmente und ihrer Ionenladung ergaben sich eine Reihe neuer Ergebnisse über den Einfluß:

1. der Emission prompter Neutronen
2. der Paarungsenergie und
3. des doppelten Schalenabschlusses ($Z = 50$, $N = 82$)

auf die Ladungsverteilung in der Kette-132, die im einzelnen schon in Kap. 3. 2. 9. diskutiert wurden.

Literaturverzeichnis:

1. N. Bohr und J. A. Wheeler, Phys. Rev. 56, 426 (1946)
2. U. Mosel und H. W. Schmitt
Nucl. Phys. A165, 73 (1971)
3. A. C. Wahl, A. E. Norris, R. A. Rouse und J. C. Williams, Proceedings 2nd Symposium on the Physics and Chemistry of Fission, IAEA, Wien (1969), S. 8
4. V. M. Strutinsky Nucl. Phys. A 95, 420 (1967)
und Nucl. Phys. A122, 1 (1968)
5. S. Amiel und H. Feldstein, Phys. Rev. C11, 845 (1974)
6. H. O. Denschlag, Habilitationsschrift, Mainz 1971
7. H. G. Clerc, K. H. Schmidt, H. Wohlfahrt, W. Lang, H. Schrader, K. E. Pferdekämper, R. Jungmann, M. Asghar, J. P. Bocquet und G. Siegert, Nucl. Phys. A247, 74 (1975)
8. G. Siegert, J. Greif, H. Wollnik, G. Fiedler, R. M. Asghar, G. Bailleul, J. P. Bocquet, J. P. Gaut, H. Schrader, P. Armbruster, H. Ewald
Phys. Rev. Lett. 34, 1036 (1975)
9. E. Kreiszig, Statistische Methoden und ihre Anwen-
Vandenhoeck und Ruprecht, Göttingen (1975)
10. A. Turkevic, J. B. Niday, Phys. Rev. 84, 52 (1951)
11. G. Wöll, H. O. Denschlag, Ausbeutesammlung, Mainz
unveröffentlicht
12. W. Grimm, Dissertation, Mainz 1971
13. J. Chaumont, Ph. D. Thesis, Paris 1970, unveröffentl.
14. H. G. Clerc, W. Lang, H. Wohlfahrt, K. H. Schmidt, H. Schrader, K. E. Pferdekämper, R. Jungmann,
Z. f. Phys. A274, 203 (1975)
15. W. Reisdorf, J. P. Unik, H. C. Griffin, L. E. Gluckstern
Nucl. Phys. A177, 331 (1971)

16. W. Reisdorf, J. P. Unik, L. E. Glendenin
Nucl. Phys. A205, 348 (1973)
17. H. Wohlfahrt, W. Lang, H. G. Clerc, K. H. Schmidt,
H. Schrader Frühjahrstagung DPHG 1976, Baden b. Wien
18. W. Lang, H. Wohlfahrt, H. G. Clerc, K. H. Schmidt,
H. Schrader Frühjahrstagung DPHG 1976, Baden b. Wien
19. B. R. Erdal, A. C. Wahl, R. L. Ferguson
J. inorg. nucl. Chem. 33, 2763 (1971)
20. N. Trautmann, N. Kaffrell, H. Ahrens, P. Dittner
Phys. Rev. C13, 872 (1975)
21. J. V. Kratz, Dissertation, Mainz 1972
22. J. V. Kratz und G. Herrmann
3rd Symposium on Physics and Chemistry of Fission,
Rochester 1973, IAEA, Wien (1974), II, S.
23. W. Faubel, Diplomarbeit, Mainz 1976 und
W. Faubel, H. O. Denschlag, Jahresbericht Institut
f. Kernchemie Mainz (1975), in Vorbereitung
24. R. Naeumann, H. Folger, H. O. Denschlag
J. inorg. nucl. Chem. 34, 1785 (1972)
25. H. Gunther, G. Siegert, R. L. Ferguson und H. Ewald
Nucl. Phys. A196, 401, (1972)
26. D. E. Troutner und R. M. Harbour
Phys. Rev. C4, 505 (1971)
27. E. Konecny, H. Gunther, H. Rösler, G. Siegert, H. Ewald
Z. Phys. 231, 50 (1970)
28. G. Paffrath, Diplomarbeit, Mainz 1972
29. H. Folger, J. V. Kratz und G. Herrmann
Radiochem. Radioanal. Letters 1, 185 (1969)
30. P. O. Strom, D. L. Love, A. E. Greendale, A. A.
Delucchi, D. Sam und N. E. Ballou
Phys. Rev. 144, 984 (1966)

31. H. O. Denschlag und M. Weber, Radiochim. Acta 15, (1971)
32. L. E. Glendenin, In Radiochemical Studies: The Fission Products (Edited by C. D. Coryell and N. Sugarman) p. 1617. Mc Graw-Hill, New York (1951)
33. V. Haase, Kernforschungsanlage Karlsruhe, Bericht 730 (1968)
34. W. Bröchle, Dissertation, Mainz 1976
35. P. R. Bevington, Data Reduction and Error Analysis in the Physical Sciences, Mc Graw-Hill Book Company (1969)
36. H. Otto, Programmbibliothek PDP 11/45, Universität Mainz, unveröffentlicht
37. K. E. Seyb , Radiochimica Acta 1, 167 (1963)
38. A. Kerek, G. B. Holm, S. Borg, L. E. De Geer Nucl. Phys. A195, 177 (1972)
39. H. Folger, Universität Mainz, private Mitteilung
40. W. Rudolph, Dissertation, Mainz 1976
41. G. Bailleul, J. P. Bocquet, H. Schrader, M. Asghar C. Chauvin, J. P. Gautheron, J. Greif, G. Siegert Fission Information Meeting and Workshop ILL Grenoble (1974) S.106
42. G. Bailleul, J. P. Bocquet, H. Schrader, R. Stippler Pfeiffer, M. Ashgar, C. Chauvin, J. P. Gautheron, J. G. Siegert, P. Armbruster, H. Ewald Z. Phys. A273, 283 (1975)
43. K. Wolfsberg, Estimated Values of Fractional Yields from Low Energy Fission and a Compilation of Measured Fractional Yields, LA-5553-MS (1974)
44. M. E. Meek und B. F. Rider, Compilation of Fission Product Yields, NEDO-12154, 71NED71, Class 1 (1972)

45. J. Blachot, R. de Tourreil, Bibliothéque de données nucléaires relative aux produits de fission CEA-N-1526
46. T. Izak und S. Amiel,
J. inorg. nucl. Chem. 34, 1469 (1972)
47. Z. B. Alfassi, J. Blachot, H. Braun, H. O. Denschlag, W. Faubel, G. Fischbach, G. Paffrath, H. Schrader und G. Siegert, Report on Measurements carried out at the ILL-HFR (1975) und Jahresbericht Institut für Kernchemie Mainz (1975), in Vorbereitung
48. B. Parsa, G. E. Gordon und A. Wenzel
, J. inorg. nucl. Chemistry 31, 585 (1969)
49. I. Fujiwara, M. Imanishi, T. Nishi
J. inorg. nucl. Chemistry 36, 1921 (1974)
50. G. Paffrath, Jahresbericht Institut für Kernchemie Mainz (1975), in Vorbereitung
51. H. W. Walker, IAEA Panel on Fission Product Nuclear Data, Bolgna (1973), AECL-4704
52. B. V. Kurchatov, L. N. Morozov, V. I. Novgorodseva, A. V. Chistyakov, V. M. Shabko
Sov. Journ. Nucl. Phys. 14, 528, (1972)
53. K. F. Flynn, H. R. v. Gunten
Helvetica Chimica Acta 52, II, 2216 (1969)
54. YU. A. Zamyatin et al. Proc. 2 nd Intern. Conf.
Nucl. Data, Helsinki (1970), Vol II, IAEA Wien, S. 183
55. W. Rudolph, K. L. Kratz, H. Ohm
Jahresbericht Institut für Kernchemie Mainz (1974)
56. W. Nörenberg, Dissertation, TH München (1966) und
Phys. Lett. 19, 589 (1965)
57. H. W. Schmitt, J. H. Neiller, F. J. Walter
Phys. Rev. 141, 1146 (1966)
58. H. Wohlfahrt, priv. Mitteilung

60. D. Jung, Diplomarbeit, Mainz (1966)
61. L. C. Northcliffe und R. F. Schilling
Nucl. Data Tables A7, 233 (1970)
62. H. Ewald und H. Hintenberger, Methoden und Anwendungen der Massenspektroskopie, Verlag Chemie Weinheim (1953)
63. J. J. Thomson, Phil. Mag. 20, 752 (1910) und
Phil. Mag. 21, 225 (1911)
64. S. Neumann, H. Ewald Z. f. Physik 169, 224 (1962)
65. E. Moll, P. Armbruster, H. Ewald, G. Fiebig, H. Lawin
H. Wollnik in Proc. Int. Conf. On Electromagnetic
Isotopeseparators and the Techniques of their Appli-
cation, ZAED, BMBW-FBK 70-28 (Marburg 1970)
66. E. Moll, G. Siegert, M. Asghar, G. Bailleul, J. P.
Bocquet, J. P. Gautheron, J. Greif, H. Hammers,
H. Schrader, P. Armbruster, G. Fiebig, H. Lawin,
K. Sistemich, H. Ewald, H. Wollnik
8 th Int. EMIS Conf., Skovde (1973)
67. G. Bailleul, J. P. Gautheron, Projet de Fin D'Etudes
Du Cours de Genie Atomique, Grenoble (1970)
68. G. Bailleul, Thesis, Grenoble 1975
69. J. P. Gautheron, Thesis, Grenoble (1974)
70. D. Hovestadt, Dissertation, TH München (1964)
71. H. Schwab, Systeme Nicole, Grenoble, Report 75S18T
(1975)
72. W. C. Schick, W. L. Talbert, J. R. Mc Connell
Phys. Rev. C4, 507 (1971)
73. J. P. Adams, Thesis, Iowa State University (1972)
74. J. T. Routti und S. G. Prussin
Nucl. Inst. Meth. 72, 125 (1969)
75. J. Terrell, Phys. Rev. 127, 880 (1962)

76. B. Meixler, H. O. Denschlag, K. Wolfsberg
Jahresbericht Institut für Kernchemie Mainz (1975)
in Vorbereitung
77. M. Eichor, D. E. Troutner, Journ. inorg, nucl. Chem.
33, 1543 (1971)
78. H. Folger priv. Mitteilung
79. A. Kerek, G. B. Holm, P. Carlé, J. Mc Donald
Nucl. Phys. A195, 159 (1972)
80. S. Borg, G. B. Holm, B. Rydberg
Nucl. Phys. A212, 197 (1973)
81. N. Trautmann, N. Kaffrell, H.W. Behlich, H. Folger,
G. Herrmann, D. Hübscher, H. Ahrens
Radiochimica Acta 18, 86 (1972)

Anhang I

In den folgenden Tabellen sind die wichtigsten Zerfalleigenschaften der Nuklide Sn-132 und Sb-132 (beide Isomeren) zusammengefaßt. Die Daten verschiedener Autoren wurden verglichen.

Tab. 27: γ -Linien und γ -Linienintensitäten aus dem
Zerfall des 38.9 s Sn-132

Borg et al. [80]		Folger [78]	
E_{γ} [keV]	I_{γ} [%]	E_{γ} [keV]	I_{γ} [%]
85.5 + 0.1	51 + 3	85.6 + 0.08	48 + 5 +)
246.7 + 0.1	44 + 2	246.9 + 0.5	38 + 4
340.2 + 0.1	45 + 2	340.3 + 0.5	49 + 5
528.7 + 0.1	2.1 + 0.2	528.5 + 0.5	2 + 1
548.8 + 0.1	2 + 0.2	549.1 + 0.5	2 + 1
651.9 + 0.2	2 + 0.2	651.5 + 0.5	3 + 1
898.5 + 0.1	44 + 2	898.7 + 0.5	48 ++)
992.2 + 0.1	40 + 2	992.1 + 0.5	38 + 4
1077.8 + 0.3	2.1 + 0.2	1077.5 + 1.0	2 + 1
1238.8 + 0.2	14 + 1	1239.0 + 1.0	12 + 1

+) α (85.6 keV) 1.0

++) Bezogen auf 974.3 keV des ^{132}Sb mit $I_{\gamma}(t_m)=100$

Tab. 28: γ -Linien und -intensitäten aus dem Zerfall
des 2.8 min Sb-132 (4^+)

Kerek et al. [79]		Bailleul et al. [42, 68]	
E_Y [keV]	I_Y [%]	E_Y [keV]	I_Y [%]
103.4 + 0.1	14; 36 ⁺)	103.4 + 0.3	17.0
353.8 + 0.2	3	353.6 + 0.6	1.5
382.3 + 0.1	8	382.6 + 0.5	2.7
436.8 + 0.2	3	437.6 + 0.5	0.6
447.3 + 0.2	2	445.9 + 0.5	0.6
609.9 + 0.3	2	611.4 + 0.3	0.6
635.6 + 0.2	10	635.7 + 0.3	8.3
696.8 + 0.1	87	696.8 + 0.3	81.0
814.1 + 0.3	5	813.0 + 0.4	2.9
816.6 + 0.2	11	816.4 + 0.3	9.9
930.0 + 0.2	1	929.4 + 0.3	1.0
973.9 + 0.1	100	974.1 + 0.3	100
989.6 + 0.2	15	989.5 + 0.2	8.1
1093.2 + 0.2	5	1092.8 + 0.3	3.9
1133.5 + 0.3	6	1133.6 + 0.3	5.0
1152.2 + 0.4	3 -	1151.7 + 0.3	2.7
1183.0 + 0.4	1.3	1182.6 + 0.5	0.9
1196.5 + 0.4	3	1196.4 + 0.3	2.6
1213.3 + 0.4	2	1213.4 + 0.3	2.2
1274.6 + 0.4	1.2		
1306.5 + 0.4	1		
1436.4 + 0.4	2	1435.7 + 0.3	8.3
1513.5 + 0.5	2	1513.4 + 0.4	2.0
1540.4 + 0.5	1		
1575.0 + 0.8	1.3	1573.3 + 0.3	0.8
1634.0 + 0.8	1	1633.6 + 0.3	1.2

+) Übergangsintensität

Tab. 29: γ -Linien und γ -Linienintensitäten aus dem Zerfall des 4.2 min $^{132}\text{Sb}(8^-)$

Kerek et al. [79]		Bailleul et al. [42,68]	
E_{γ} [keV]	I_{γ} [%]	E_{γ} [keV]	I_{γ} [%]
103.4 + 0.1	35; 90 ⁺)	103.4 + 0.3	17.0
150.6 + 0.1	66; 70 ⁺)	150.6 + 0.3	10.0
276.0 + 0.2	4	276.5 + 0.3	0.6
293.0 + 0.2	4		
368.6 + 0.2	7	368.4 + 0.3	0.7
382.3 + 0.1	7	382.6 + 0.5	2.7
496.5 + 0.2	13	497.0 + 0.3	1.2
696.8 + 0.1	100	696.8 + 0.3	81.0
881.9 + 0.3	6	881.7 + 0.3	1.2
973.9 + 0.1	100	974.1 + 0.3	100
1041.5 + 0.3	18	1042.0 + 0.3	2.0
1166.9 + 0.3	10	1166.2 + 0.3	1.3
1378.8 + 0.4	4	1380.4 + 0.3	0.5
1763.7 + 0.8	4		
1854.6 + 0.8	2		
2664 + 1	4		

+) Übergangsintensität

Anhang II

Rechenprogramm zur Ermittlung der Bildungsraten der untersuchten Nuklide

Da die Sammlung der Nuklide und ihre Messung am Massenspektrometer Lohengrin diskontinuierlich bzw. kontinuierlich geschehen kann, mußten zwei verschiedene Versionen des Rechenprogramms erstellt werden.

Im Rahmen dieser Arbeit wurde jedoch nur mit kontinuierlichem Bandantrieb gearbeitet, sodaß die Programmschreibung auf das für diese Arbeitsweise geschaffene Programm beschränkt werden kann.

Wie in den Gleichungen 24 und 25 hergeleitet lassen sich die Bildungsraten der Nuklide durch Korrektur der Werte mit einfachen Exponentialgleichungen berechnen.

Ein in Fortran geschriebenes und anschließend gelinktes Programm für die Rechenanlagen PDP 11/45 und CD 33 wurde entwickelt.

Als Korrekturen für die Bandgeschwindigkeit und die Parameter x_1 , x_2 , x_3 wird der Faktor H_1 berechnet, die gemessene Zählrate des entsprechenden Nuklids auf den Zerfall während des Bandtransportes korrigiert. Um absolute Bildungsraten zu erhalten, müssen die Nachweiswahrscheinlichkeit des Ge(Li)-Detektors und die Linienintensität des untersuchten γ -Überganges berücksichtigt werden.

Das Ergebnis dieser Rechnung stellt die Bildungsrate eines Elementes pro mm Transportband und pro Zeit dar.

Das vorliegende Programm ist für eine bzw. zwei Komponenten ausgerichtet und kann beliebig erweitert werden.

Die Berechnung der Fehler der Bildungsraten erfolgt durch einfache Fehlerfortpflanzungsrechnung, wie es in [35] beschrieben ist.

Außer diesem Standardprogramm liegen Variationen vor, die die Unterteilung der Sammelzone, bzw. eine weitere

für die Abnahme der Spaltproduktintensität entlang der Sammelzone, berücksichtigen.

Um dieses Programm für den diskontinuierlichen Bandbetrieb einsetzen zu können, muß die Berechnung des Faktors H_1 geändert werden [47].

PROGRAMM HOVST2

PROGRAMM HOVESTADT SOLL DIE BERECHNUNG DER ANFANGS-
AKTIVITÄTEN FÜR KONTINUIERLICHEN BANDFOLIE VORNEHMEN

VERWENDETE PARAMETER

VSN	VERSUCHSNUMMER
ICOM	KOMMENTARKARTE
TH1	HALBWERTSZEIT 1. KOMPONENTE
TH2	HALBWERTSZEIT 2. KOMPONENTE
N	ANZAHL DER WERTEPAARE
NAME	NAME EQ. 1 FIT FÜR EIN KETTENGLIED
	NAME EQ. 2 FIT FÜR 2 KOMPONENTEN
	NAME EQ. 3 FIT FÜR 3 KOMPONENTEN
VBAND	BANDGESCHWINDIGKEIT IN MM/SEC
EN1	GAMMAENERGIE FÜR 1. KOMPONENTE
EN2	GAMMAENERGIE FÜR 2. KOMPONENTE
EFI1	EFFICIENCY GE(LI)-DETEKTOR
EFI2	EFFICIENCY GE(LI)-DETEKTOR
H1	LINIENHÄUFIGKEIT 1. KOMPONENTE
H2	LINIENHÄUFIGKEIT 2. KOMPONENTE
ZA	IMPULSE KOMPONENTE 1
Z3	IMPULSE KOMPONENTE 2
RA	ANFANGSAKTIVITÄT NUKLID A PRO SEC UND MM
RB	ANFANGSAKTIVITÄT NUKLID B PRO SEC UND MM
X1,X2,X3	HOVESTADTPARAMETER
	X1 COLLECTING
	X2 SHIELDING
	X3 MEASURING
HA	HOVESTADTKORREKTUR FÜR NUKLID A
HB	HOVESTADTKORREKTUR FÜR NUKLID B

ALLE GRÖSSEN MIT F... GEBEN DIE FEHLER DER ENTSPRE-
CHENDEN PARAMETER OHNE F AN

PROGRAMMENTWICKLUNG G. PAFFRATH 20. AUGUST 1975

WEITERENTWICKLUNG VON HOVST (APRIL 1975)

NACH BAILLEUL UND GAUTHERON ILL GRENoble

```

COMMON VSN(50),ZA(50),ZR(50),RA(50),RB(50),
1 VBAND(50),ICOM(20),HA(50),H1(50),Q(50),FQ(50),
2 FZA(50),FZR(50),FRA(50),FRB(50),FHA(50),FH1(50)
REAL LAMBDA,LAMBDAH
2 FORMAT(I1)
21 FORMAT(F15.5)
3 FORMAT(J(F15.5))
400 FORMAT(1H,11H EFFICIENCY,F10.6,2I-7,F10.5)
5 FORMAT(I5)
501 FORMAT(20A2)
    
```

```

1      * FISSION ==) A ---) 2, ///)
504  FORMAT (1H ,# FITWERTE FUER 2 KOMPONENTEN#,/,/,
1      * FISSION FISSION#,/,
2      * ,/,
3      * A ---) 3 ---) 2, ///)
507  FORMAT (1H ,15H GAMMALINIE BEI,F10.2,6H (KEV),
1      20H LINIENINTENSITAET ,F10.4,#+-#,F10.4,
2      15H HALBWERTSZEIT ,F15.4,6H (SEC),/)
520  FORMAT (1H0,41H ***** ,/,
1      22H * X1 (SAMMELBREITE) ,F7.2,9H (MM) ,/,
2      22H * X2 (SPALT=)ZICK) ,F7.2,9H (MM) ,/,
3      22H * X3 (DETECTORGR ) ,F7.2,9H (MM) ,/,
4      41H ***** ,/)
530  FORMAT (1H0,# VERSUCHSNUMMER #,A8)
533  FORMAT (1H0,21H BANDGESCHWINDIGKEIT ,F10.4,9H (MM/SEC),///)
534  FORMAT (1H0,10H ZAEHLRATE,F15.5,8H (IMP/H),
1      10H ANFANGSAKTIVITAET,F15.5,11H (IMP/H*MM),///)
535  FORMAT (1H0,# NUKLID A 1. KOMPONENTE#,/)
536  FORMAT (1H ,# NUKLID B 2. KOMPONENTE#,/)
537  FORMAT (1H ,41H ***** ,/)
538  FORMAT (1H ,# 1. KOMPONENTE NUKLID A #,/)
539  FORMAT (1H ,# 2. KOMPONENTE NUKLID B #,/)
540  FORMAT (1H0,# VERHAELTNIS RB(I)/RA(I) = #,F15.5,
1      #,#+-#,F12.10,///)
541  FORMAT (1H0,# ZAEHLRATE#,F15.5,# (IMP/H)#,
1      # ANFANGSAKTIVITAET #,F15.5,# +- #,F15.5,
2      # (IMP/H*MM)#,/)
7      FORMAT (A8,F15.5)
905  FORMAT (1H ,A8,2X,2(F15.5))
911  FORMAT (1H ,# HOVESTADTFAKTOR A#,F10.4,
1      # HOVESTADTFAKTOR B#,F10.4,/)
912  FORMAT (1H ,# HOVESTADTFAKTOR FUER NUKLID A #,F10.4,/)
915  FORMAT (1H1,/)
926  FORMAT (1H0)
927  FORMAT (1H0,A8,2X,F15.5,2X,F10.5,2X,2(F12.3,2X))
928  FORMAT (1H0,A8,2X,F10.3,2X,2(F10.5,2X),4(F12.3,2X))
929  FORMAT (1H ,40(##,1X))
931  FORMAT (5(F10.5))
932  FORMAT (2(F15.5))

```

INPUT DER FESTDATEN

```

000  READ 501,ICOM
      IF (IFEOF(60).EQ.-1) GOTO 1001

```

ANGABE DER ART DES FITS ----- NAME = 1 NUR 1 KOMPONENTE
 NAME = 2 MEHR ALS EINE KOMPONENTE

READ 2,NAME

INPUT DER GAMMAENERGIEN,LINIENHAEUFIGKEIT UND EFFICIENCY-WERTE
 BEI NUR EINER KOMPONENTEN SPRINGT DAS PROGRAMM AUTOMATISCH
 UEBER DEN EINLESEDEFELT FUER DIE ZWEITE KOMPONENTE

READ 931,EM1,H1,FH1,LEI1,FEF11

IF(NAME.EQ.1)GOTO 30
READ 931,EN2,H2,FH2,EFI2,FEFI2

EINGABE DER HOVESTADTKORREKTURPARAMETER

READ 21,TH1
IF(NAME.EQ.1)GOTO 20
READ 21,TH2

EINGABE DER HOVESTADTPARAMETER X1,X2,X3

READ 3,X1,X2,X3

INPUT DER ANZAHL WERTEPAARE N

READ 5,N

EINGABE DER MESSWERTE ZA,ZB,VSN,VBAND

DO 6 I=1,N
READ 7,VSN(I),VBAND(I)
READ 932,ZA(I),FZA(I)
IF(NAME.EQ.1)GOTO 6
READ 932,ZB(I),FZB(I)
6 CONTINUE

BERECHNUNG DES MESSFEHLERS FALLS NICHT ANGEDEUTET

DO 542 I=1,N
IF(FZA(I).NE.0.)GOTO 543
FZA(I)=SQRT(ZA(I))
3 IF(NAME.EQ.1)GOTO 542
IF(FZB(I).NE.0.)GOTO 542
FZB(I)=SQRT(ZB(I))
2 CONTINUE

BERECHNUNG DES HOVESTADTKORREKTURFAKTORS

MITHILFE DER HOVESTADTPARAMETER X1,X2,X3,
DER BANDGESCHWINDIGKEIT UND DER HALBWERTSZEIT

LAMBDA=ALOG(2.)/TH1

BERECHNUNG VON HA FUEER DIE ERSTE KOMPONENTE

DO 10 I=1,N
H01=1.-EXP(-LAMBDA*X1/VBAND(I))
H02=EXP(-LAMBDA*X2/VBAND(I))
H3=1.-EXP(-LAMBDA*X3/VBAND(I))
HA(I)=H01*H02*H3*VBAND(I)/LAMBDA
RA(I)=ZA(I)/HA(I)
RA(I)=RA(I)/(H1*EFI1)

BERECHNUNG DER FEHLER

```

ARA=(1./(H1*EFI1))**2
BRA=(FH1*ZA(I)/H1)**2
CRA=(FEFI1*ZA(I)/EFI1)**2
FRA(I)=4DA*(ZA(I)+BRA+CRA)
FRA(I)=SQRT(FRA(I))
FRA(I)=FRA(I)/HA(I)
10 CONTINUE
IF (NAME.EQ.1) GOTO 500

```

BERECHNUNG DER HOVESTADTKORREKTUR H3 FUEER DIE ZWEITE KOMPONENTE UND DIE ANFANGSAKTIVITAET

```

LAMBOB=ALOG(2.)/TH2
DLAM=LAMBDA-LAMBOB
DO 101 I=1,N
H4=1.-EXP(-LAMBOB*X1/VBAND(I))
H5=EXP(-LAMBOB*X2/VBAND(I))
H6=1.-EXP(-LAMBOB*X3/VBAND(I))
H3(I)=H4*H5*H6*VBAND(I)/LAMBOB
A=ZB(I)/HB(I)
B=RA(I)/HB(I)*((LAMBDA/DLAM)*HB(I)+(LAMBOB/(-DLAM))*HA(I))
B=B*H2*EFI2
RB(I)=A-B
RB(I)=RB(I)/(H2*EFI2)
Q(I)=RB(I)/RA(I)

```

BERECHNUNG DER FEHLER

```

ARB=(1./HB(I))**2
BRB=(FZB(I)/(H2*EFI2))**2
CRB=(FH2*ZB(I)/(H2*H2*EFI2))**2
DRB=(FEFI2*ZB(I)/(H2*EFI2*EFI2))**2
ERB=((LAMBDA/DLAM)*HB(I)+(LAMBOB/(-DLAM))*HA(I))
GRB=(FRA(I)*ERB)**2
FRB(I)=ARB*(BRB+CRB+DRB+GRB)
FRB(I)=SQRT(FRB(I))

```

BERECHNUNG DER FEHLER

```

AQ=(1./RB(I))**2
BQ=FRA(I)**2
CQ=(FRB(I)*RA(I)/RB(I))**2
FQ(I)=AQ*(BQ+CQ)
FQ(I)=SQRT(FQ(I))
101 CONTINUE

```

AUSGABE DER BERECHNETEN DATEN SOWIE DER INPUTWERTE
AUF LINEPRINTER

A FUEER NUR EINE KOMPONENTE, WENN NAME=1

```

IF (NAME.GT.1)GOTO 500.
500 PRINT 915
PRINT 501,ICOM
PRINT 537
PRINT 503
PRINT 537
PRINT 520,X1,X2,X3
PRINT 507,EN1,H1,FH1,TH1
PRINT 400,EFI1,FEFI1
PRINT 926
DO 922 I=1,N
PRINT 927,VSN(I),VBAND(I),HA(I),ZA(I),RA(I)
922 CONTINUE
PRINT 926
DO 522 I=1,N
PRINT 915
PRINT 929
PRINT 501,ICOM
PRINT 926
PRINT 503
PRINT 926
PRINT 520,X1,X2,X3
PRINT 507,EN1,H1,FH1,TH1
PRINT 400,EFI1,FEFI1
PRINT 926
PRINT 530,VSN(I)
PRINT 533,VBAND(I)
PRINT 912,HA(I)
PRINT 541,ZA(I),RA(I),FRA(I)
522 CONTINUE
GOTO 1000
C
C AUSGABE DER BERECHNETEN DATEN FÜR 2 KOMPONENTEN
C
600 PRINT 915
PRINT 501,ICOM
PRINT 537
PRINT 504
PRINT 537
PRINT 520,X1,X2,X3
PRINT 534
PRINT 507,EN1,H1,FH1,TH1
PRINT 400,EFI1,FEFI1
PRINT 539
PRINT 507,EN2,H2,FH2,TH2
PRINT 400,EFI2,FEFI2
PRINT 926
DO 50 I=1,N
PRINT 928,VSN(I),VBAND(I),HA(I),HB(I),ZA(I),ZB(I),RA(I),RB(I)
50 CONTINUE
PRINT 926
DO 605 I=1,N
PRINT 915
PRINT 501,ICOM
PRINT 504
PRINT 520,X1,X2,X3

```

```
PRINT 507,EN1,H1,FH1,TH1
PRINT 400,EFI1,FEFI1
PRINT 507,EN2,H2,FH2,TH2
PRINT 400,EFI2,FEFI2
PRINT 929
PRINT 539,VSN(I)
PRINT 926
PRINT 533,VBAND(I)
PRINT 911,HA(I),HQ(I)
PRINT 538
PRINT 541,ZA(I),RA(I),FRA(I)
PRINT 539
PRINT 541,ZB(I),RB(I),FRB(I)
PRINT 540,Q(I),FQ(I)
505 CONTINUE
GOTO 1000
001 STOP 7777
END
```

Anhang III

Transfer der Grenoblespektren auf ein an der CD 3300
verarbeitbares Magnetband

Das vorliegende Programm transferiert die in Grenoble
auf einer PDP 10 auf Magnetband ausgegebenen Daten in
einen an der CD 3300 in Mainz lesbaren Code.

Die Struktur der Daten auf dem in Grenoble beschriebenen
Band ist wie folgt:

9 Spur

Schreibdichte: 1600 BPI (entspricht High Density)

Blocklänge : 200 Worte

Schreibcode : EBCD

Die Struktur der Ausgabedaten ist:

7 Spur

Schreibdichte: 800 BPI (entspricht High Density)

Blocklänge : 4096 Worte

Schreibcode : BCD

Derart erstellte Datenbänder können auf der CD beliebig
gelesen und bearbeitet werden. Die Bearbeitung der
Daten an der PDP 11/45 kann durch den Einbau einer
Konvertierungsroutine erfolgen. Die Auswertung kann
mit allen an der PDP und CD verfügbaren Programmen
vorgenommen werden.

```

CHARACTER CH
COMMON NUMOR,ISPEK(4096)
DIMENSION IBUFF(200),CH(1)
EQUIVALENCE(IBUFF(1),CH(1))
DATA J,K,IFLIP/3*1/
M=20
10 CONTINUE
  BUFFER IN(M,0)(IBUFF(1),IBUFF(200))
  IFUN=IFUNIT(M)+2
  GOTO(11,20,12,13),IFUN
20 CONTINUE
  IF(IBUFF(J).NE.4HPN1)GOTO 40
30 CONTINUE
  DECODE(31,1000,IBUFF(J)) NUMOR1,LONG1,IREFER
1000 FORMAT(19X,2I5,I2)
  IF(IREFER.EQ.2)GOTO 10
  IF(IREFER.NE.1)GOTO 16
  IF(IFLIP.NE.0) GOTO 35
  BUFFER OUT(21,1)(NUMOR,ISPEK(4096))
  IF(IFUNIT(21).NE.0) GOTO-14
35 CONTINUE
  IFLIP=0
  NUMOR=NUMOR1
  LONG=LONG1
  J=J+20
  K=1
  IF(J.LT.200)GOTO 40
  J=J-200
  GOTO 10
40 CONTINUE
  IF(IBUFF(J).EQ.4HPN1)GOTO 30
  DECODE(8,2000,IBUFF(J)) ISPEK(K)
2000 FORMAT(I8)
  J=J+2
  K=K+1
  IF(J.LT.200)GOTO 40
  J=J-200
  GOTO 10
11 PRINT 2001
2001 FORMAT(1H0,5X,*** PARITY ERROR ***/,)
  STOP 11
12 CONTINUE
  ENDFILE-21
  REWIND 21
  STOP 12
13 CONTINUE
  PRINT 2002
2002 FORMAT(1H0,5X,*** IFUNIT ERROR GT 2 ***/,)
  STOP 13
14 CONTINUE
  STOP 14
16 PRINT 2003
2003 FORMAT(1H0,5X,*** SPECIAL COMMENT ON GRENOBLE TAPE ***/,)
  STOP 16
END

```

SUBROUTINE KOPF(NUMOR, LONG)

PRINT 3001, NUMOR, LONG

3001 FORMAT(1H0, 5X, #TREATED SPECTRUM NR #, I5, # WITH #, I5,
1 # CHANNELS#, //)

RETURN

END

SI FORTRAN DIAGNOSTIC RESULTS FOR KOPF

NO ERRORS

9A, K054)

4, K453, , , , 0)

, 1)

MASTER, PLI9, F1)

Für die Überlassung des Themas der vorliegenden Arbeit und die fruchtbaren Diskussionen während ihrer Durchführung danke ich Herrn Prof. H. O. Denschlag.

Den Herren J. Blachot, H. Braun, H. O. Denschlag, W. Faubel, G. Fischbach, H. Meixler, G. Siegert, H. Schrader, T. Tamai und K. Wolfsberg schulde ich Dank für ihre Unterstützung bei der Durchführung der Experimente am Massenseparator Lohengrin.

Der Programmberatung des Rechenzentrums der Universität Mainz sei für ihre Mühen bei der Verarbeitung der Computerbänder aus Grenoble gedankt.

Den Mitarbeitern der mechanischen und elektronischen Werkstatt gilt mein Dank für ihre Unterstützung im Bau und der Betreuung von Apparaturen und der verschiedenen elektronischen Hilfsmittel.

Weiterhin möchte ich allen denjenigen danken, die hier ungenannt bleiben aber dennoch ihren Beitrag zum Gelingen dieser Arbeit gegeben haben.

Lebenslauf

Gottfried P a f f r a t h

geboren: 23. 9. 1946 in Worms/Rhein

Eltern : Adolf Paffrath, Elektrotechniker i.R.
Antonie Paffrath, geb. Ketterle

Familienstand: verheiratet mit Claudia Paffrath,
geb. Theis
Lehrerin
1 Kind, Karen Christine, geb. 5. 9. 1974

Schule : Volksschule München-Neuaubing 1952-1957
Oberrealschule München-Pasing 1957-1965
Gauß-Gymnasium Worms 1965-1967
Reifeprüfung im Juni 1967

Studium : Wintersemester 1967/68 Studienbeginn
an der Joh.-Gutenberg Universität Mainz

Studienfach : Chemie, Diplom

Prüfungen : Vordiplomprüfung 1969
Hauptdiplom 1. April 1972

